

Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades der  
mathematisch-naturwissenschaftlichen Fakultät der  
Universität Augsburg

**Untersuchungen an  
LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub>-Heterostrukturen mittels  
Kelvin-Sonden Kraftmikroskopie**

Veronika Vera Tinkl  
Experimentalphysik 6  
Universität Augsburg

Augsburg, September 2012

Tag der mündlichen Prüfung: 23. November 2012

Erstgutachter: Prof. Dr. J. Mannhart

Zweitgutachter: P.D. Dr. H.-A. Krug von Nidda

# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung</b>	<b>3</b>
<b>2. Grundlagen der Rastersondenmikroskopie</b>	<b>6</b>
2.1. Grundlagen der Rastertunnelmikroskopie . . . . .	10
2.2. Grundlagen der Rasterkraftmikroskopie . . . . .	13
2.3. Grundlagen der Kelvin-Sonden Kraftmikroskopie . . . . .	16
<b>3. LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub>-Heterostrukturen</b>	<b>20</b>
3.1. LaAlO <sub>3</sub> und SrTiO <sub>3</sub> . . . . .	20
3.2. LaAlO <sub>3</sub> /SrTiO <sub>3</sub> -Grenzfläche . . . . .	21
<b>4. Der verwendete Versuchsaufbau</b>	<b>27</b>
4.1. Vakuumsystem . . . . .	27
4.2. Rastersondenmikroskop . . . . .	30
4.3. qPlus-Sensor . . . . .	31
4.4. Backgate Probenträger . . . . .	34
4.5. Messaufbau . . . . .	35
4.6. Instrumentelle Weiterentwicklungen . . . . .	37
<b>5. Experimentelle Untersuchungen an LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub>-Heterostrukturen</b>	<b>40</b>
5.1. Probenherstellung . . . . .	40
5.2. Präparation der Probenoberfläche . . . . .	42
5.3. Untersuchte Proben . . . . .	42
5.4. Spitzenpräparation . . . . .	46
5.5. Topografie-Abbildungen . . . . .	46
5.6. Messung des Kontaktpotentials . . . . .	47
5.7. Ergebnisse und Diskussion . . . . .	53
<b>6. Zusammenfassung</b>	<b>57</b>
<b>7. Ausblick</b>	<b>59</b>
<b>Anhang</b>	
<b>A. Tunneltheorie von Bardeen</b>	<b>61</b>
<b>B. Schaltpläne</b>	<b>64</b>

<b>C. Instrumentelle Entwicklungen</b>	<b>72</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>75</b>



# 1. Einleitung

Die Vorstellung des Rastertunnelmikroskops 1982 von G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber und E. Weibel [1] begründete einen neuen Zweig an Mikroskopie: die Rastersondenmikroskopie.<sup>1</sup> Bereits zehn Jahre zuvor war von Young *et al.* ein Instrument, der Topografiner, präsentiert worden [5], das zahlreiche Ähnlichkeiten mit dem späteren Rastertunnelmikroskop aufwies. Da für die Abbildung der Probenoberfläche ein Feldemissionssignal genutzt wurde, war die laterale Auflösung auf 400 nm beschränkt. Der Aufstieg des Rastertunnelmikroskops wurde durch die Auflösung der Si(111)- $7\times 7$  Struktur eingeleitet [6]. Für die Entwicklung des Rastertunnelmikroskops erhielten G. Binnig und H. Rohrer 1986 den Nobelpreis für Physik. Im selben Jahr wurde mit dem Rasterkraftmikroskop der zweite Typ von Rastersondenmikroskop eingeführt [7]. Danach wurden noch zahlreiche weitere Typen entwickelt. Durch ihr einfaches Grundprinzip und das exzellente Auflösungsvermögen sind die Rastersondenmikroskope aus der Oberflächenphysik nicht mehr wegzudenken. Ein Feld, das immer mehr an Bedeutung gewinnt, ist die Untersuchung von Oberflächen oxidischer Materialien [8].

Oxidische Materialien besitzen bereits als reine Materialien interessante Eigenschaften wie Ferroelektrizität, Piezoelektrizität, Hochtemperatur-Supraleitung und Ferromagnetismus [9]. Diese Eigenschaften werden unter anderem durch elektronische Korrelationen im Material erzeugt. Kombiniert man zwei Oxide zu einer Heterostruktur so können an der Grenzfläche neuartige Phasen entstehen [10]. Oxidischen Grenzflächen lassen sich hochqualitativ erzeugen, so dass beispielsweise der Quanten Hall Effekt an oxidischen Grenzflächen gefunden wurde [11].

Eine ausgiebig untersuchte oxidische Heterostruktur ist die Grenzfläche zwischen  $\text{LaAlO}_3$  und  $\text{SrTiO}_3$ . Kombiniert man die beiden Isolatoren, entsteht eine leitfähige Grenzschicht [12]. Die Leitfähigkeit tritt nur auf, wenn  $\text{LaAlO}_3$  mit einer Mindestdicke von vier Einheitszellen auf  $\text{TiO}_2$ -terminiertes  $\text{SrTiO}_3$  gewachsen wird [13]. An dieser Grenzfläche wurden schon zahlreiche rastersondenmikroskopische Untersuchungen durchgeführt. So war es durch rastertunnelmikroskopische Messungen an einem Querschnitt der Heterostruktur möglich, die Dicke der leitfähigen Schicht auf wenige Nanometer einzugrenzen [14]. Außerdem konnten mit der Spitze eines Rasterkraftmikroskops in isolierende Heterostrukturen mit nur drei Einheitszellen  $\text{LaAlO}_3$  leitfähige,

---

<sup>1</sup>Das Rasterelektronenmikroskop, das bereits 1935 eingeführt wurde [2], wird nicht den Rastersondenmikroskopen zugeordnet, sondern gehört zur Klasse der Elektronenmikroskope. Im Gegensatz zu den Rastersondenmikroskopen wird bei einem Elektronenmikroskop ein Bild der Probe über eine elektronenoptische Abbildung erzeugt. Eine Klassifikation der Rastersondenmikroskope findet sich in Referenz [3, 4].

Nanometer große Strukturen geschrieben werden [15, 16]. Diese Strukturen konnten durch das Anlegen einer Spannung zwischen Spitze und Grenzfläche reversibel erzeugt werden. Die wichtige Rolle von Korrelationen im Elektronensystem an der Grenzfläche wurde durch tunnelspektroskopische Messungen hervorgehoben [17]. Weiterhin wurde die Verteilung des Oberflächenpotentials mittels Kelvin-Sonden Kraftmikroskopie abgebildet [18, 19].

Neben diesen rastersondenmikroskopischen Untersuchungen konnten weitere interessante Eigenschaften des Systems gefunden werden. So wurde die Koexistenz von Supraleitung und Magnetismus bei sehr tiefen Temperaturen nachgewiesen [20–23]. Ferner wurde durch Kapazitätsmessungen an Au/LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub>- und YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>/LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub>-Kondensatoren eine negative elektronische Kompressibilität des Systems identifiziert [24].

Für die elektronische Kompressibilität  $\kappa$  eines Systems gilt:

$$\kappa = \left( n^2 \frac{d\mu}{dn} \right)^{-1}, \quad (1.1)$$

mit der Ladungsträgerdichte  $n$  und dem elektrochemischen Potential  $\mu$ . Eine negative elektronische Kompressibilität bedeutet, dass das elektrochemische Potential ansteigt, obwohl die Ladungsträgerdichte reduziert wird. Die negative Kompressibilität des Grenzflächen-Elektronensystems ist deutlich größer als bisher gemessene negative Kompressibilitäten von zweidimensionalen Elektronengasen in Si-Heterostrukturen [25] und in GaAs-Strukturen [26, 27] sowie von Kohlenstoff Nanoröhrchen [28]. In den meisten Halbleiter Heterostrukturen kann die negative Kompressibilität durch die Dominanz von Austausch- und Wechselwirkungstermen erklärt werden [29]. Die Ursache der negativen Kompressibilität in LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub>-Heterostrukturen ist Bestandteil aktueller Forschung und konnte noch nicht vollständig geklärt werden.

Bisher wurde die elektronische Kompressibilität nur für Proben mit zehn und zwölf Einheitszellen LaAlO<sub>3</sub> gemessen [24]. Es wird erwartet, dass die negative Kompressibilität auch bei einer Filmdicke von vier Einheitszellen auftritt. Da die Tunnel- und Leckströme zwischen einer Elektrode auf der Oberfläche des Films und der Grenzfläche durch so eine dünne LaAlO<sub>3</sub>-Schicht die exakte Messung der Kapazität mit der genutzten Methode deutlich erschweren, konnte die LaAlO<sub>3</sub>-Filmdicke in Referenz [24] nicht weiter reduziert werden. Deshalb wurde in der vorliegenden Arbeit ein anderer Ansatz zur Messung der elektronischen Kompressibilität verfolgt. Mit der lokalen Methode der Kelvin-Sonden Kraftmikroskopie kann die Austrittsarbeit der Grenzfläche bestimmt werden. Die Austrittsarbeit steht in direktem Zusammenhang mit dem elektrochemischen Potential. Für die Bestimmung der elektronischen Kompressibilität muss die Austrittsarbeit für verschiedene Ladungsträgerdichten an der Grenzfläche gemessen werden. In dem am Lehrstuhl für Experimentalphysik 6 vorhandenen Rastersondenmikroskop ist es möglich, Gate-Spannungen an die Heterostruktur anzulegen. Die so erzeugten elektrischen Felder verändern die Ladungsträgerdichte der Grenzfläche [13]. Dies ermöglicht die Messung der elektronischen Kompressibilität von

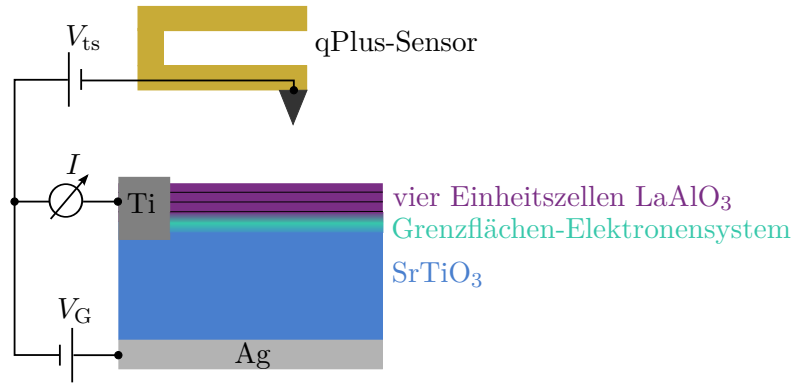


Abbildung 1.1.: Schematische Darstellung des verwendeten Versuchsaufbaus. Die Kraft zwischen Spitze und Probe wird mittels einer Quarz-Stimmgabel (qPlus-Sensor) als Funktion der zwischen Spitze und Probe angelegten Spannung  $V_{ts}$  detektiert. Simultan dazu wird der Strom  $I$  an der Grenzfläche aufgezeichnet. Die Ladungsträgerdichte an der Grenzfläche kann durch eine Gate-Spannung  $V_G$  zwischen Grenzfläche und dem Silberkleber auf der Rückseite des  $\text{SrTiO}_3$ -Substrats verändert werden. (Aus Referenz [30].)

Proben mit besonders dünnen  $\text{LaAlO}_3$ -Filmen [30]. Der verwendete Versuchsaufbau ist in Abbildung 1.1 skizziert.

Die sehr große Erhöhung der Kapazität an  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostrukturen [24] aufgrund der negativen Kompressibilität macht oxidische-Heterostrukturen interessant für Anwendungen in elektronischen Bauelementen. Die große Kapazitätserhöhung könnte die Miniaturisierung der Bauelemente weiter vorantreiben [31].

Meine Doktorarbeit beginnt mit einer Einführung in die Rastersondenmikroskopie (Kapitel 2). Dabei werden das Rastertunnelmikroskop, das Rasterkraftmikroskop und das Kelvin-Sonden Kraftmikroskop genauer vorgestellt. Anschließend werden die beiden Materialien  $\text{LaAlO}_3$  und  $\text{SrTiO}_3$  eingeführt und die grundlegenden Eigenschaften der Grenzfläche zwischen Beiden dargelegt (Kapitel 3). Im folgenden Kapitel 4 wird der verwendete Versuchsaufbau aufgezeigt. Die Präsentation der Ergebnisse der rastersondenmikroskopischen Messungen findet sich in Kapitel 5. Die Arbeit schließt mit einer Zusammenfassung und einem Ausblick ab.

## 2. Grundlagen der Rastersondenmikroskopie

Die Rastersondenmikroskopie (scanning probe microscopy, SPM) bezeichnet eine Gruppe von Mikroskopietechniken bei denen ein Bild der Probenoberfläche über die Wechselwirkung eines Sensors mit der Oberfläche aufgezeichnet wird. Der Sensor wird über die Probenoberfläche gerastert, so dass Punkt für Punkt ein Bild von ihr entsteht. Die Art des Sensors variiert dabei je nach zu messender Wechselwirkung. Die am weitesten verbreiteten Rastersondenmikroskope sind das Rastertunnelmikroskop (scanning tunneling microscope, STM) [1, 32] und das Rasterkraftmikroskop (atomic force microscope, AFM) [7]. Die einfachsten Rastersondenmikroskope sind an Luft einsetzbar. Zur Verbesserung der Oberflächen-Sauberkeit und zur Verringerung des thermischen Drifts können die Mikroskope im Ultrahochvakuum (UHV) und bei tiefen Temperaturen betrieben werden. Mit einem Rastersondenmikroskop können Auflösungen im subatomaren Bereich erreicht werden [33, 34].

In diesem Kapitel wird zunächst der allgemeine Aufbau eines Rastersondenmikroskops behandelt. Anschließend wird die Funktionsweise eines STM, eines AFM und eines Kelvin-Sonden Kraftmikroskops im Einzelnen erläutert.

Den grundlegenden Aufbau eines Rastersondenmikroskops zeigt Abbildung 2.1. Das Mikroskop besteht aus einem festen Rahmen, auf dem die Probe befestigt ist. Auf diesem kann ein Schlitten, auf dem die Sensoreinheit montiert ist, bewegt werden. Alternativ dazu ist auch ein Aufbau möglich, bei dem der Sensor am Rahmen befestigt

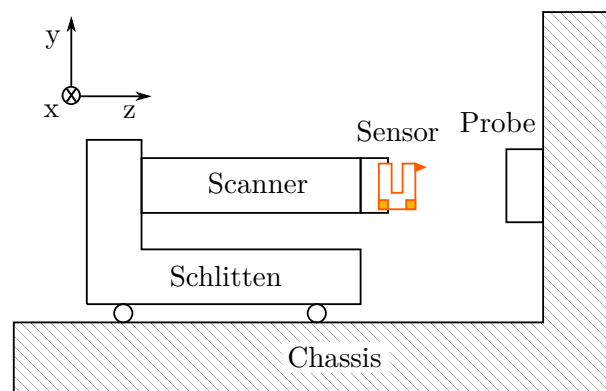


Abbildung 2.1.: Grundlegender Aufbau eines Rastersondenmikroskops.

ist und die Probe auf einem Schlitten bewegt wird. Da das Funktionsprinzip in beiden Fällen gleich ist, wird dieser Aufbau hier nicht gesondert betrachtet. Der Schlitten dient zur Grobannäherung der Sensoreinheit an die Probe. Mit ihm wird der Sensor so nahe an die Probe gefahren, bis sich deren Oberfläche innerhalb des  $z$ -Hubs der Raster-einheit (Scanner) befindet. Die Schrittweite der Annäherung sollte dabei die maximale Ausdehnung des Scanners nicht überschreiten, da sonst die Gefahr eines Zusammenstoßes zwischen Sensor und Probe besteht. Eine mögliche Realisierung einer solchen Grobannäherung ist ein Trägheitsmotor [35]. Die am häufigsten verwendeten Typen eines Trägheitsmotors sind der Scherpiezoantrieb und der Rückstoßantrieb. Abbildung 2.2 zeigt die Funktionsweise eines Scherpiezoantriebs. Der Sensor wird schrittweise zur

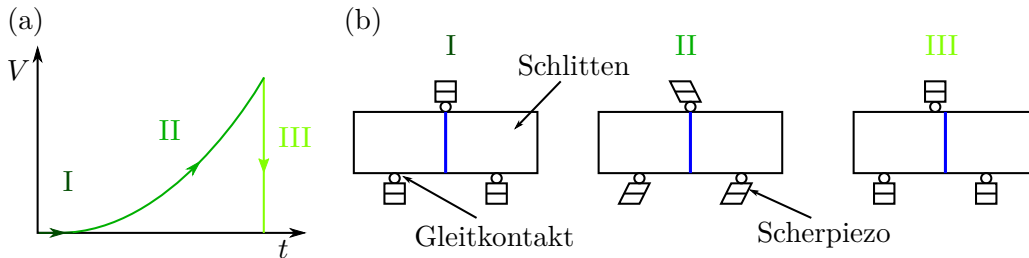


Abbildung 2.2.: Funktionsweise eines Scherpiezoantriebs zur Grobpositionierung: (a) eine mögliche Beschaltungsspannung, (b) die einzelnen Abschnitte eines Motorschritts. Der Schlitten wird zwischen Stapeln aus Scherpiezos mit Gleitkontakten fixiert. Ein Motorschritt besteht aus den drei Abschnitten: I ruhende Phase der Stapel, II langsame Ausdehnung der Stapel und III schnelle Kontraktion der Stapel.

Probe bewegt. Ein einzelner Schritt kann in drei Abschnitte unterteilt werden. Während des gesamten Bewegungsablaufs wird der Schlitten durch eine Klemmvorrichtung zwischen mehreren Stapeln von Scherpiezos fixiert. Die Bewegung startet mit einem ruhenden Schlitten (Abschnitt I). In Abschnitt II werden alle Piezos mitsamt Schlitten in eine Richtung bewegt. Dann wird die Beschleunigungsspannung innerhalb eines kurzen Zeitintervalls stark verringert (Abschnitt III). Die so erzeugte Beschleunigung ist größer als die Haftreibung zwischen Piezo und Schlitten. Die Piezos gehen in ihre Ausgangslage zurück, während der Schlitten der ruckartigen Bewegung nicht folgt und auf seiner Position verharret. Ein Motorschritt wurde ausgeführt.

Eine weitere Möglichkeit zur Grobannäherung der Spitze an die Probe ist ein Rückstoßantrieb [36]. Abbildung 2.3(a) zeigt eine mögliche Beschaltungsspannung, die nach Referenz [37] am Besten für diesen Typ von Motor geeignet ist. Es handelt sich hierbei um eine Zykloide. Die Steigung der Beschaltungsspannung wird so gewählt, dass die Beschleunigung nicht ausreicht um die Haftreibung zwischen Schlitten und Chassis zu überwinden. Der Piezo bewegt nur die Masse  $m_h$ . Für den abgebildeten Spannungsverlauf wird die Masse nach rechts bewegt. Am Scheitelpunkt der Kurve wird die

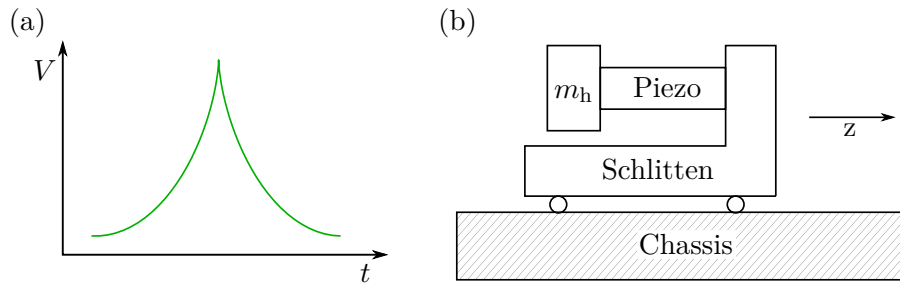


Abbildung 2.3.: Funktionsweise eines Rückstoßantriebs zur Grobpositionierung: (a) eine mögliche Beschaltungsspannung, (b) Aufbau des Antriebs. Am Schlitten des Mikroskops wird zusätzlich zur Sensoreinheit ein Piezo mit einem Gewicht  $m_h$  am anderen Ende angebracht. Am Scheitelpunkt der Beschaltungsspannung ist die Beschleunigung so groß, dass die Haftreibung des Schlittens überwunden werden kann und er sich nach rechts bewegt.

Beschleunigung der Masse so groß, dass die Haftreibung überwunden werden kann und der Schlitten nach rechts rutscht. Im weiteren Verlauf geht der Piezo in seine Ausgangslage zurück. Der Schlitten hat einen Schritt zur Probe ausgeführt. Um eine Bewegung in die andere Richtung zu erreichen, muss eine an der Zeitachse gespiegelte Beschleunigungsspannung angelegt werden.

Das Abrastern der Probenoberfläche wird durch eine Rastereinheit realisiert. Um eine gute Auflösung zu erreichen, muss die Rastereinheit den Sensor mit einer Genauigkeit in der Größenordnung der atomaren Skalen positionieren können. Dies wird durch die Verwendung von piezoelektrischen Materialien wie Quarz oder verschiedener Blei-Zirkonat-Titanate erreicht. Eine mögliche Bauart für die Rastereinheit ist ein piezoelektrisches Röhrchen [38]. Auf diesem sind vier Außenelektroden und eine Innenelektrode angebracht. In Abbildung 2.4 ist ein solches Röhrchen zusammen mit einer möglichen Beschaltung durch die Steuerspannungen  $V_{X+}$ ,  $V_{X-}$ ,  $V_{Y+}$ ,  $V_{Y-}$  und  $V_Z$  skizziert. Die an jeweils gegenüberliegenden Außenelektroden angelegten Span-

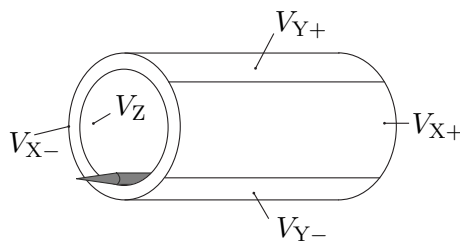


Abbildung 2.4.: Schematische Darstellung eines Röhrchenpiezos mit einer möglichen Wahl der Beschaltungsspannungen  $V_{X+}$ ,  $V_{X-}$ ,  $V_{Y+}$ ,  $V_{Y-}$  und  $V_Z$ .

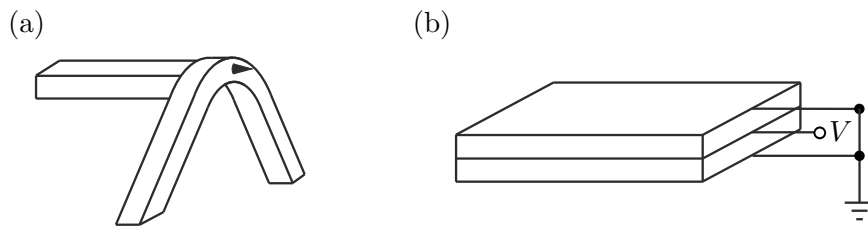


Abbildung 2.5.: Schematische Darstellung verschiedener Möglichkeiten für die Realisierung einer Rastereinheit. In (a) ist ein Tripod gezeigt, in (b) ein Bimorph.

nungen haben den gleichen Betrag, aber ein unterschiedliches Vorzeichen. Die Spitze wird im Bereich der Stirnfläche des Röhrchens befestigt. Sie kann durch Biegung und Stauchung des Röhrchens in alle drei Raumrichtungen bewegt werden.

Eine weitere Möglichkeit zur Realisierung der Rastereinheit ist ein Tripod oder mehrere Bimorphe ([39] und Abbildung 2.5). Ein Tripod besteht aus drei einzelnen piezoelektrischen Blöcken, die jeweils eine Auslenkung der Spitze in eine der drei Raumrichtungen erzeugen. Bei einem Bimorph hingegen werden zwei piezoelektrische Platten aufeinander geklebt. Legt man eine Spannung  $V$  an die gemeinsame Elektrode der beiden Platten an und erdet die anderen beiden Elektroden, so dehnt sich eine der Platten aus, während sich die andere zusammenzieht. Dies führt zu einer Biegung des Bimorphs. Eine Bewegung in alle drei Raumrichtungen kann durch die Kombination einzelner Bimorphe erreicht werden. Da der Röhrchenpiezo einfacher aufgebaut ist als die anderen beiden Varianten und er hohe Resonanzfrequenzen besitzt, wird er häufig als Rastereinheit verwendet.

Bei einem Rastersondenmikroskop wird aufgrund der Wechselwirkung eines Sensors mit der Probe ein Bild der Probenoberfläche aufgezeichnet. Die verschiedenen Arten der Bildgewinnung werden am Beispiel des Rastertunnelmikroskops erläutert. Bei diesem wird ein Tunnelstrom  $I_t$  zwischen einer Spitze und einer leitfähigen Probe gemessen. Die einfachste Art der Bildgewinnung ist der *constant-height-Modus*. Hierbei wird die Spitze auf eine konstante Höhe über die Oberfläche gebracht. Die  $z$ -Ausdehnung der Rastereinheit wird über den gesamten Rastervorgang konstant gehalten. Änderungen in der Topografie der Probe schlagen sich im Tunnelstrom nieder. Das gemessene Bild besteht aus der Funktion:  $I_t(x, y, z = \text{const.})$ . Der *constant-height-Modus* ist eine einfache Art der Abrasterung. Er ist allerdings nur auf atomar glatten Oberflächen anwendbar. Außerdem ist es z.B. aufgrund thermischen Drifts schwierig, den tatsächlichen Abstand zur Probe während des Rastervorgangs konstant zu halten. Eine andere Möglichkeit der Bildgewinnung ist der *Topografie-Modus*. Hier wird in der Regeleinheit ein konstanter Wert für den Tunnelstrom vorgegeben. Während des Rastervorgangs wird der Spitzen-Proben-Abstand so eingestellt, dass der Sollwert für den Tunnelstrom erreicht wird. Die Spitze folgt also der Topografie der Probe. Die

Topografie ergibt sich zu:  $z(x, y, I_t = \text{const.})$ .

## 2.1. Grundlagen der Rastertunnelmikroskopie

Das Rastertunnelmikroskop wurde 1982 von G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber und E. Weibel vorgestellt [1, 40]. Der Sensor besteht lediglich aus einer leitfähigen Spitze und es wird ein Tunnelstrom  $I_t$  zwischen dieser Spitze und der leitfähigen Probe gemessen. Seinen Durchbruch erzielte das STM mit der Auflösung der Si(111)- $7 \times 7$  Struktur [6].

Damit ein Strom fließt, müssen Elektronen die Vakuumbarriere zwischen Spitze und Probe überwinden. Dies ist durch den Tunneleffekt möglich. Eine vereinfachte eindimensionale Betrachtung liefert dabei bereits wesentliche Merkmale des Tunnelstroms. Für diese Betrachtung müssen die Elektronen quantenmechanisch beschrieben werden. Ein Elektron der Energie  $E$  im Potential  $U(z)$  wird in der Quantenmechanik durch eine Wellenfunktion  $\psi(z)$  charakterisiert, die die stationäre Schrödinger Gleichung erfüllt:

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dz^2} \psi(z) + U(z) \psi(z) = E \psi(z). \quad (2.1)$$

Hier ist  $m$  die Elektronenmasse und  $\hbar = h/(2\pi)$  mit der Planckkonstanten  $h$ . Im einfachsten Fall des Tunneleffekts wird die Tunnelbarriere durch eine rechteckige Potentialbarriere der Höhe  $U$  und der Breite  $a$  beschrieben (Abbildung 2.6).

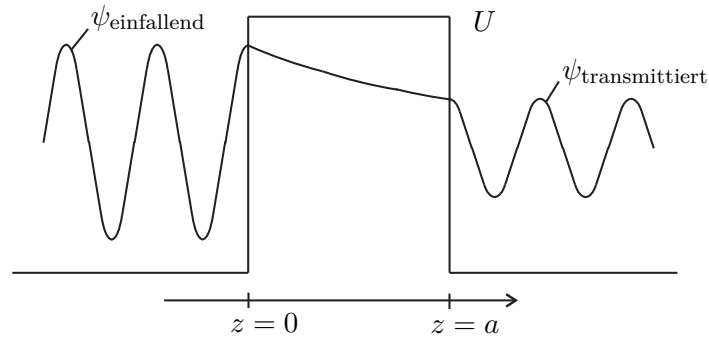


Abbildung 2.6.: Skizze einer rechteckigen Tunnelbarriere. Die Tunnelbarriere ist von der Höhe  $U$  und der Breite  $a$ . Weiterhin ist die Wellenfunktion eines von links einfallenden Elektrons zu sehen.

Außerhalb der Barriere besteht die Wellenfunktion aus ebenen Wellen mit der Wellenzahl  $k = \frac{\sqrt{2mE}}{\hbar}$ . Innerhalb der Barriere wird die stationäre Schrödinger Gleichung



für  $E < U$  durch folgende Funktion gelöst:

$$\psi(z) = \psi(0)\exp(-\kappa z) \quad \text{mit} \quad \kappa = \frac{\sqrt{2m(U-E)}}{\hbar}. \quad (2.2)$$

Die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons innerhalb der Barriere,  $z \in (0, a)$ , beträgt

$$|\psi(z)|^2 = |\psi(0)|^2 \exp(-2\kappa z) \quad (2.3)$$

und ist somit nicht Null. Das Elektron kann die Barriere durchdringen.

Die Tunnelbarriere eines Rastertunnelmikroskops wird im Folgenden durch eine Metall-Vakuum-Metall Barriere beschrieben (Abbildung 2.7). Die Austrittsarbeit  $\phi$  ist

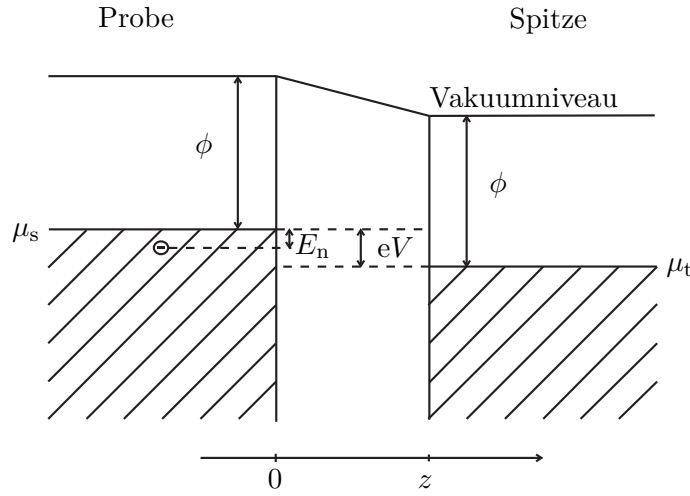


Abbildung 2.7.: Schematisches Energiediagramm der Tunnelbarriere unter Annahme gleicher Austrittsarbeit  $\phi$  von Spitze und Probe. Es ist ein Elektron mit der Energie  $E_n$  eingezeichnet, das aufgrund der angelegten Spannung  $V$  in die Spitze tunneln kann.  $\mu_s$  und  $\mu_t$  bezeichnen die elektrochemischen Potentiale von Probe und Spitze.

die Energie, die mindestens nötig ist, um ein Elektron aus dem Festkörper auf das Vakuumniveau zu heben. Zur Vereinfachung wird der Sonderfall gleicher Austrittsarbeiten von Spitze und Probe betrachtet. Für Temperaturen nahe dem Nullpunkt beschreibt das elektrochemische Potential  $\mu$  die höchste besetzte Energie im Material. Hier wird  $\mu$  als Energienullpunkt festgelegt. Elektronen in der Probe werden durch Zustände  $\psi_n$  mit Energie  $E_n$  beschrieben. Legt man eine Spannung  $V > 0$  an die Spitze an, so können Elektronen aus der Probe mit  $E_n \in [-eV, 0]$  in unbesetzte Zustände der Spitze tunneln.  $e$  bezeichnet die Elementarladung. Für sehr kleine Spannungen  $eV \ll \phi$  gilt:  $\phi - E_n \approx \phi$ . Der Tunnelstrom ist somit:

$$I_t = I_0 \exp(-2\kappa z) \quad \text{mit der Abklingkonstanten} \quad \kappa = \frac{\sqrt{2m\phi}}{\hbar}. \quad (2.4)$$

Für eine Austrittsarbeit von  $\phi \approx 5 \text{ eV}$  erhält man für die Abklingkonstante:  $\kappa \approx 1 \text{ \AA}^{-1}$ . Der Tunnelstrom hängt für eine konstante Barrierenhöhe exponentiell vom Spitzen-Proben-Abstand  $z$  ab und ist nur bei sehr kleinen Abständen messbar.

Eine genauere Beschreibung für den Tunnelstrom erhält man durch die Störungstheorie von Bardeen [41] (siehe Anhang A). Bardeen betrachtet die beiden Elektroden der Tunnelbarriere zuerst als zwei unabhängige Teilsysteme und löst in ihnen jeweils die Schrödinger Gleichung. Die Transmission von Elektronen zwischen den beiden Elektroden wird dann durch eine zeitabhängige Störungstheorie berücksichtigt und die Tunnelmatrix  $M$  kann berechnet werden. Für den Tunnelstrom erhält man:

$$I_t = \frac{4\pi e}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} [f(\mu_s - eV + \epsilon) - f(\mu_t + \epsilon)] \rho_s(\mu_s - eV + \epsilon) \rho_t(\mu_t + \epsilon) |M|^2 d\epsilon. \quad (2.5)$$

Mit der Fermi-Dirac-Verteilungsfunktion  $f(E) = (1 + \exp((E - \mu)/k_B T))^{-1}$ , den elektrochemischen Potentialen von Probe  $\mu_s$  und Spitze  $\mu_t$ , der Boltzmann-Konstanten  $k_B$ , der Temperatur  $T$  und den Zustandsdichten von Probe  $\rho_s$  und Spitze  $\rho_t$ .

Im Fall einer sehr niedrigen Temperatur und einer näherungsweise konstanten Tunnelmatrix kann diese Formel vereinfacht werden:

$$I_t \propto \int_0^{eV} \rho_s(\mu_s - eV + \epsilon) \rho_t(\mu_t + \epsilon) d\epsilon.$$

Ist außerdem die Näherung erlaubt, dass die Zustandsdichte der Spitze im betrachteten Energieintervall konstant ist, so ist der differentielle Leitwert proportional zur Zustandsdichte der Probe:

$$\frac{dI_t(V)}{dV} \propto \rho_s(\mu_s - eV). \quad (2.6)$$

Die Näherung einer konstanten Tunnelmatrix ist nur im Bereich sehr kleiner Spannungen gültig. Bereits bei Spannungen im Bereich von 2 V muss die Energieabhängigkeit der Tunnelmatrix berücksichtigt werden [39]. Dies äußert sich in einer annähernd exponentiellen Abhängigkeit des Tunnelstroms und damit auch des differentiellen Leitwerts von der Spannung  $V$ . Diese exponentielle Abhängigkeit kann in der Auswertung durch eine Normierung auf den absoluten Leitwert  $I_t/V$  unterdrückt werden. Eine Möglichkeit zur Berechnung des normierten differentiellen Leitwerts (NDC) lautet wie folgt:

$$\text{NDC} \equiv \frac{dI_t/dV}{I_t/V + \epsilon}. \quad (2.7)$$

Der normierte differentielle Leitwert wird in der Praxis oft als Maß für die Zustandsdichte der Probe herangezogen [42]. Der Parameter  $\epsilon$  wird empirisch eingeführt, um Divergenzen im NDC bei kleinen Spannungen zu unterdrücken [43]. Die Normierung erleichtert außerdem den Vergleich von differentiellen Leitwerten, die bei verschiedenen Spitzen-Proben-Abständen aufgenommen wurden.

Die lokale Zustandsdichte der Probe kann somit über die Analyse der Spannungsabhängigkeit des Tunnelstroms auf einer gegebenen Stelle der Probe ermittelt werden. Dies wird als Tunnelspektroskopie bezeichnet. Bei einem festen Spitzen-Proben-Abstand wird die an der Spitze angelegte Spannung durch ein Intervall  $[V_{\min}, V_{\max}]$  gefahren und der resultierende Tunnelstrom gemessen. Durch Bildung des NDC erhält man ein zu der Zustandsdichte der Probe proportionales Signal.

## 2.2. Grundlagen der Rasterkraftmikroskopie

Ein großer Nachteil des Rastertunnelmikroskops besteht darin, dass nur leitfähige Proben untersucht werden können. Dieser Nachteil wird durch einen anderen Typ von Rastersondenmikroskopen, dem Rasterkraftmikroskop, kompensiert [7]. Hier besteht der Sensor aus einer Feder mit einer feinen Spitze, die die Kraft zwischen Spitze und Probe misst. Die Abbildung der Si(111)7×7 Struktur durch F. Giessibl 1995 [44] machte endgültig klar, dass das AFM atomare Auflösung liefert.

Zwischen Spitze und Probe treten zahlreiche Kräfte auf. Diese können durch das Wechselwirkungspotential  $U_{\text{ts}}$  beschrieben werden. Die Kraft zwischen Spitze und Probe in  $z$ -Richtung kann aus  $U_{\text{ts}}$  berechnet werden:  $F_{\text{ts}} = -\frac{\partial U_{\text{ts}}}{\partial z}$ . Für sehr kleine Abstände zwischen Spitze und Probe tritt eine repulsive Kraft auf. Diese resultiert aus der Überlappung der Elektronenwolken der vordersten Atome, die aufgrund des Pauli-Prinzips zu einer Abstoßung der beiden Atome führt. Die Abstandsabhängigkeit des Potentials kann phänomenologisch durch  $1/r^{12}$ , mit dem Abstand  $r$  der beiden Atome, beschrieben werden [45].

Ein Beispiel für einen attraktiven Anteil ist die van-der-Waals Wechselwirkung. Sie entsteht durch die Wechselwirkung von spontan entstehenden und induzierten elektrischen Dipolen. Für zwei einzelne Atome bzw. Moleküle ist die Abstandsabhängigkeit durch  $1/r^6$  gegeben. Das Lennard-Jones Potential fasst diese beiden Kräfte zusammen:

$$U_{\text{Lennard-Jones}} = -E_{\text{bond}} \cdot \left( 2 \left( \frac{\sigma}{r} \right)^6 - \left( \frac{\sigma}{r} \right)^{12} \right), \quad (2.8)$$

mit der Bindungsenergie  $E_{\text{bond}}$  und dem Gleichgewichtsabstand  $\sigma$ . Der Potentialverlauf ist für  $E_{\text{bond}} = 5 \text{ eV}$  und  $\sigma = 5 \text{ \AA}$  in Abbildung 2.8 dargestellt.

$U_{\text{ts}}$  kann für Spitzen-Proben-Abstände im Bereich der interatomaren Abstände durch das Lennard-Jones Potential angenähert werden [46], da die Wechselwirkung zwischen dem vordersten Spitzen-Atom und dem ihm nächsten Atom auf der Probe dominiert. Für größere Abstände muss die van-der-Waals Wechselwirkung zwischen weiter entfernten Atomen der Spitze und der Probe berücksichtigt werden. In der Hamaker-Näherung [47] wird die van-der-Waals Wechselwirkung durch eine Integration über das Spitzen- und Probenvolumen berechnet. Für eine sphärische Spitze mit Radius  $R$  erhält man:  $U_{\text{vdW}} = -\frac{A_{\text{H}}R}{6z}$  [48]. Die Hamaker-Konstante  $A_{\text{H}}$  wird dabei vom

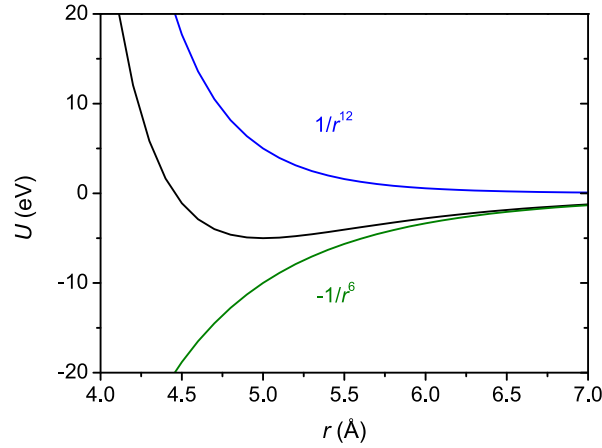


Abbildung 2.8.: Das Lennard-Jones Potential für typische Werte der Bindungsenergie  $E_{\text{bond}} = 5 \text{ eV}$  und des Gleichgewichtsabstands  $\sigma = 5 \text{ Å}$ . Die schwarze Kurve beschreibt das Gesamtpotential, die blaue Kurve den repulsiven Anteil des Potentials und die grüne Kurve den attraktiven Anteil.

Material der Spitze und der Probe bestimmt. Für eine sphärische Spitze hängt die van-der-Waals Kraft somit von  $1/z^2$  ab. Für parabolische oder kegelförmige Spitzen erhält man eine  $1/z$  Abhängigkeit der Kraft [46]. Weitere langreichweitige Wechselwirkungen sind die elektrostatische und die magnetische Wechselwirkung.

Um die Kräfte zwischen Spitze und Probe messen zu können, besteht der Sensor aus einer einseitig eingespannten Balkenfeder, dem sogenannten Cantilever [7,49]. Die Auslenkung des Cantilevers ist ein Maß für die Kraft, die auf die Spitze wirkt. Der erste Cantilever bestand aus einer Gold-Folie mit einer Diamant Spitze [7]. Eine andere einfache Art der Ausführung ist die Verwendung von Metall-Drähten als Cantilever [50]. In den meisten kommerziellen Mikroskopen werden Cantilever aus Silizium verwendet. Auf ihnen wird mittels Ätzen eine Spitze mit einer bestimmten kristallografischen Orientierung erzeugt [51]. Eine weitere Möglichkeit zur Realisierung eines Kraftsensors sind Quarz-Stimmgabeln (siehe Kapitel 4.3).

Bei einem Rasterkraftmikroskop gibt es zwei grundlegende Arten, die Kraft zwischen Spitze und Probe zu messen: den *statischen* und den *dynamischen Modus*. Im *statischen Modus* erzeugt die Kraft  $F_{\text{ts}}$  zwischen Spitze und Probe eine Auslenkung  $q$  des Cantilevers. Die Auslenkung ist über das Hooksche Gesetz mit der Kraft verknüpft:  $F_{\text{ts}} = kq$  mit der Federkonstanten  $k$ . Beim Abrastern der Probe wird die  $z$ -Ausdehnung des Piezos so eingestellt, dass die Auslenkung des Cantilevers einem Sollwert  $q_{\text{soll}}$  entspricht. Die Topografie der Probe ist somit:  $z(x, y, F_{\text{ts}} = \text{const.})$ . Ein Vorteil des *statischen Modus* ist die einfache Interpretation der Daten. Allerdings berührt die Spitze beim Abrastervorgang in diesem Modus die Probenoberfläche. Dies führt zu Scherkräften, die auf die Spitze wirken und eine Deformation dieser erzeugen

können. Eine Deformation der Spitze während der Bildaufzeichnung kann zu Artefakten im gemessenen Bild führen und sollte deshalb vermieden werden.

Im *dynamischen Modus* wird der Cantilever durch einen Aktuator zu Schwingungen der Amplitude  $A$  angeregt (Abbildung 2.9). Nähert man den Cantilever als eine mas-

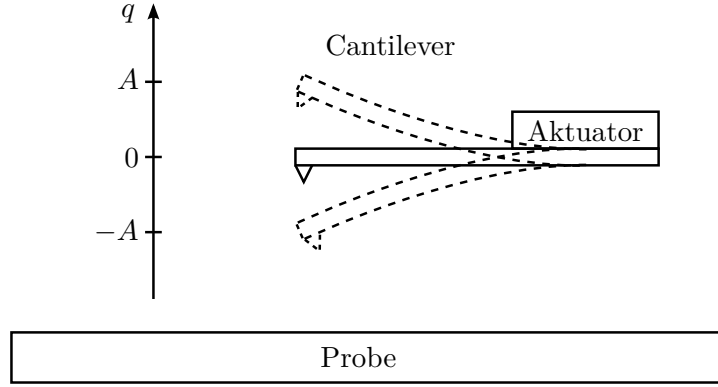


Abbildung 2.9.: Skizze eines mit der Amplitude  $A$  schwingenden Cantilevers über einer Probenoberfläche. Die Auslenkung des Cantilevers wird durch die Variable  $q$  wiedergegeben.

selose Balkenfeder an, an deren Ende eine Punktmasse mit der effektiven Masse  $m^*$  angebracht ist, so gilt für seine Eigenfrequenz:  $\omega_0 = \sqrt{\frac{k}{m^*}}$ . Im *Frequenz-Modulations-Modus* (FM-Modus) [52] wird der Cantilever zu einer Schwingung mit konstanter Amplitude bei seiner augenblicklichen Resonanzfrequenz angeregt. Tritt der Cantilever in Wechselwirkung mit der Probe, so ändert sich seine Resonanzfrequenz:

$$\omega_{0,WW} = \sqrt{\frac{k_{\text{eff}}}{m^*}} \quad \text{mit} \quad k_{\text{eff}} = k + k_{\text{ts}} = k + \frac{\partial^2 U_{\text{ts}}}{\partial z^2}, \quad \text{falls } k_{\text{ts}} \approx \text{const.} \quad (2.9)$$

Die Federkonstante  $k_{\text{ts}} = \frac{\partial^2 U_{\text{ts}}}{\partial z^2}$  wird durch die Wechselwirkung erzeugt. Im FM-Modus wird die Änderung der Resonanzfrequenz des Cantilevers  $\Delta\omega$  gemessen. Für diese gilt:

$$\Delta\omega = \omega_{0,WW} - \omega_0 = \sqrt{\frac{k + k_{\text{ts}}}{m^*}} - \sqrt{\frac{k}{m^*}} \approx \omega_0 \frac{k_{\text{ts}}}{2k}, \quad \text{falls } k_{\text{ts}} \ll k. \quad (2.10)$$

Im klassischen FM-Modus ist die Näherung einer über den Schwingungszyklus konstanten Federkonstanten  $k_{\text{ts}}$  nicht zulässig. Die Frequenzverschiebung muss störungstheoretisch berechnet werden [53]:

$$\Delta\omega(z) = \omega_0 \frac{\langle k_{\text{ts}}(z) \rangle}{2k}. \quad (2.11)$$

Hier wird der über einen Halbkreis mit Radius  $A$  in einer Ebene senkrecht zur Probenoberfläche gewichtete Mittelwert von  $k_{ts}(z)$  berücksichtigt (Abbildung 2.10):

$$\langle k_{ts}(z) \rangle = \frac{2}{\pi A^2} \int_{-A}^A k_{ts}(z+q) \sqrt{A^2 - q^2} dq. \quad (2.12)$$

Im FM-Modus wird der Spitzen-Proben-Abstand auf einen konstanten Wert von  $\Delta\omega$  eingestellt. Für die Topografie der Probe erhält man:  $z(x, y, \Delta\omega = \text{const.})$ .

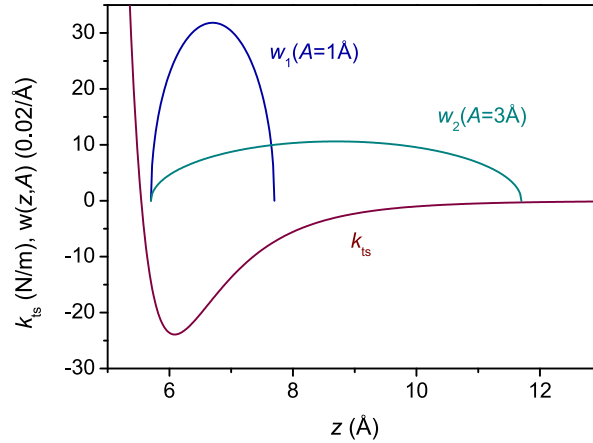


Abbildung 2.10.: Berechnung der Frequenzverschiebung  $\Delta\omega$ .  $\Delta\omega$  wird aus einer Faltung einer Gewichtsfunktion  $w$ ,  $w(q, A) = 2/(\pi A^2) \sqrt{A^2 - q^2}$ , mit der Federkonstanten der Spitzen-Proben-Anordnung berechnet. Die Gewichtsfunktion wurde für zwei verschiedene Schwingungsamplituden  $A_1 = 1 \text{ Å}$  und  $A_2 = 3 \text{ Å}$  eingezeichnet.

Der *Amplituden-Modulations-Modus* ist eine weitere Möglichkeit, wie das AFM betrieben werden kann. Hier wird der Cantilever bei einer festen Frequenz  $\omega_{\text{drive}} \neq \omega_0$  zu einer Schwingung angeregt. Nähert man den Cantilever an die Probe an, so verschiebt sich die Resonanzfrequenz des Cantilevers. Dies führt zu einer Veränderung der Schwingungsamplitude des Cantilevers. Der Spitzen-Proben-Abstand wird nun so angepasst, dass die Amplitude einem bestimmten Sollwert entspricht. Für die Topografie der Probe ergibt sich:  $z(x, y, A = \text{const.})$ .

### 2.3. Grundlagen der Kelvin-Sonden Kraftmikroskopie

Das Kelvin-Sonden Kraftmikroskop [54] ist ein spezieller Typ eines Rasterkraftmikroskops. Mit ihm wird die Verteilung des Oberflächenpotentials einer Probe gemessen.

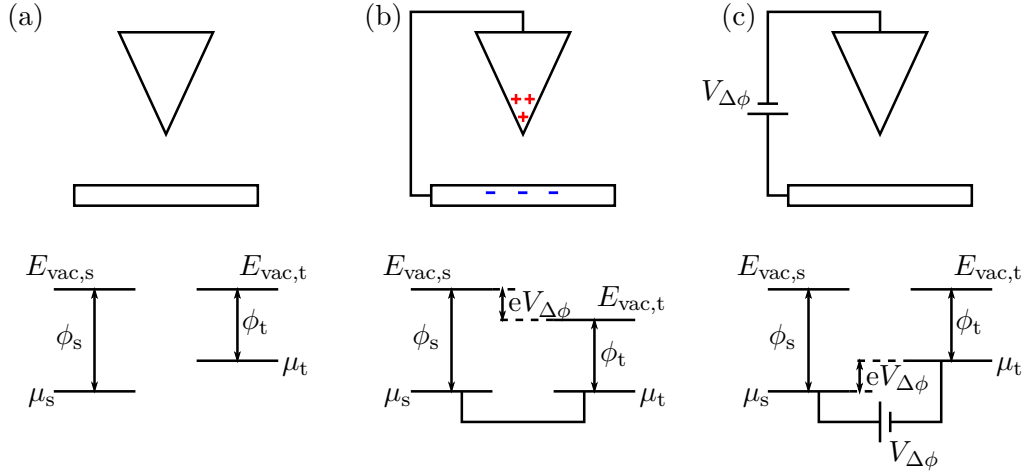


Abbildung 2.11.: Schematisches Banddiagramm der Spitze und der Probe. (a) Dargestellt sind Spitze und Probe mit ihren Austrittsarbeiten  $\phi_t$  bzw.  $\phi_s$ , ihren elektrochemischen Potentialen  $\mu_t$  bzw.  $\mu_s$  und den Vakuumniveaus  $E_{vac,t}$  bzw.  $E_{vac,s}$ . (b) Eine elektrische Verbindung von Spitze und Probe führt zu einer Ladungsumverteilung. Spitze und Probe sind geladen. (c) Wird das Kontaktpotential  $V_{\Delta\phi}$  zwischen Spitze und Probe angelegt, so fließen die Ladungen zurück und die Beiden sind wieder ungeladen.

Sind die Austrittsarbeiten von Spitze  $\phi_t$  und Probe  $\phi_s$  unterschiedlich groß, so unterscheiden sich ihre elektrochemischen Potentiale  $\mu_s$  und  $\mu_t$  (Abbildung 2.11). Verbindet man nun die beiden Materialien elektrisch, so fließt kurzzeitig ein Strom, bis sich die elektrochemischen Potentiale der beiden Materialien angeglichen haben. Dieser Stromfluss führt dazu, dass Spitze und Probe an ihrer Oberfläche Netto-Ladungen tragen. Diese Ladungen führen zu einer Potentialdifferenz zwischen den Oberflächen von Spitze und Probe, dem Kontaktpotential  $V_{\Delta\phi}$ . Die Größe des Kontaktpotentials kann durch folgenden Überlegung bestimmt werden (nach Referenz [55]): ein Elektron mit der Energie des elektrochemischen Potentials werde aus der Spitze entfernt und durch die Oberfläche der Probe auf ein Niveau der Probe gebracht, das ebenfalls die Energie des elektrochemischen Potentials besitzt. Die für diesen Zyklus aufgewendete Arbeit muss aufgrund der Energieerhaltung verschwinden. Die Arbeit für die Entfernung eines Elektrons aus der Spitze und Einbringung des Elektrons in die Probe ist gegeben durch die Differenz der Austrittsarbeiten:  $\phi_t - \phi_s$ . Diese Arbeit muss durch ein äußeres elektrisches Feld aufgebracht werden. Für die Potentialdifferenz zwischen Spitze und Probe muss also gelten:

$$-eV_{\Delta\phi} = \phi_t - \phi_s. \quad (2.13)$$

Das Kontaktpotential ist somit gegeben durch:

$$V_{\Delta\phi} = \frac{\Delta\phi}{e} = \frac{\phi_s - \phi_t}{e}. \quad (2.14)$$

Aufgrund der Oberflächenladungen wirkt eine elektrostatische Kraft auf den Cantilever. Durch das Anlegen einer Spannung zwischen Spitze und Probe werden die elektrochemischen Potentiale relativ zueinander verschoben. Dadurch ändert sich auch die Anzahl der nicht kompensierten Ladungen in den beiden Materialien und damit auch die elektrostatische Kraft. Die elektrostatische Kraft wird genau dann aufgehoben, wenn eine Spannung zwischen Spitze und Probe angelegt wird, die dem Kontaktpotential entspricht.

Für eine näherungsweise Beschreibung der elektrostatischen Kraft können die Spitze und die Probe als Kondensator mit der Kapazität  $C_{ts}$  betrachtet werden. Für den Energieinhalt  $U_{es}$  eines Kondensators gilt:

$$U_{es} = \frac{1}{2} C_{ts} V^2 = \frac{1}{2} C_{ts} (V_{ts} - V_{\Delta\phi})^2, \quad (2.15)$$

mit der Potentialdifferenz  $V$  zwischen Spitze und Probe und der zwischen Spitze und Probe angelegten Spannung  $V_{ts}$ . Für die elektrostatische Kraft gilt somit:

$$F_{es} = -\frac{\partial U_{es}}{\partial z} = -\frac{1}{2} \frac{\partial C_{ts}}{\partial z} (V_{ts} - V_{\Delta\phi})^2. \quad (2.16)$$

Die elektrostatische Kraft verschwindet für  $V_{ts} = V_{\Delta\phi}$ .

Die gängigste Methode zur Messung des Kontaktpotentials in einem Kelvin-Sonden Kraftmikroskop ist die Verwendung des Kapazitäts-Vibrations-Prinzips [56]. Dafür wird zwischen Spitze und Probe eine Überlagerung einer Gleich- (DC) und einer Wechselspannung (AC) angelegt  $V_{ts} = V_{DC} + V_{AC} \sin(\tilde{\omega}t)$ . Die elektrostatische Kraft enthält nun Terme, die von der Frequenz  $\tilde{\omega}$  der Wechselspannung abhängen:  $F_{es} = F_{es,DC} + F_{es,\tilde{\omega}} + F_{es,2\tilde{\omega}}$ . Da die Kraft proportional zum Quadrat der Spannung ist, entsteht auch ein Term  $F_{es,2\tilde{\omega}}$ , der von  $2\tilde{\omega}$  abhängt.

$$\begin{aligned} F_{es,DC} &= -\frac{1}{2} \frac{\partial C_{ts}}{\partial z} \left[ (V_{DC} - V_{\Delta\phi})^2 + \frac{V_{AC}^2}{2} \right] \\ F_{es,\tilde{\omega}} &= -\frac{\partial C_{ts}}{\partial z} (V_{DC} - V_{\Delta\phi}) V_{AC} \sin(\tilde{\omega}t) \\ F_{es,2\tilde{\omega}} &= \frac{1}{4} \frac{\partial C_{ts}}{\partial z} V_{AC}^2 \cos(2\tilde{\omega}t) \end{aligned} \quad (2.17)$$

Der DC-Anteil,  $F_{es,DC}$ , trägt zum Topografie-Signal bei. Der von  $\tilde{\omega}$  abhängige Term,  $F_{es,\tilde{\omega}}$ , wird zur Bestimmung des Kontaktpotentials verwendet.  $F_{es,2\tilde{\omega}}$  kann für Kapazitäts-Mikroskopie verwendet werden [57, 58].

Aus der elektrostatischen Kraft resultiert eine Verschiebung der Resonanzfrequenz des Cantilevers  $\Delta f_{es}$  (siehe Gleichung (2.10)). Mit einem Lock-In Verstärker wird der Anteil von  $\Delta f_{es}$  mit der Frequenz  $\tilde{\omega}$ ,  $\Delta f_{es,\tilde{\omega}} \propto -\partial F_{es,\tilde{\omega}} / \partial z$ , detektiert. Der Betrag der Gleichspannung wird nun so angepasst, dass  $\Delta f_{es,\tilde{\omega}}$ , und damit auch  $F_{es,\tilde{\omega}}$ , verschwindet. In diesem Fall gilt:  $V_{DC} = V_{\Delta\phi}$ . Die angelegte Gleichspannung entspricht somit dem Kontaktpotential.



In einem Kelvin-Sonden Kraftmikroskop werden zwei Regelschleifen parallel verwendet. Die eine Regelschleife regt den Cantilever bei seiner Resonanzfrequenz  $\omega_0$  zu Schwingungen an und regelt auf eine konstante Höhe. Sie dient zur Aufzeichnung der Topografie der Probe. In der anderen Regelschleife wird  $V_{DC}$  so angepasst, dass  $\Delta f_{es,\omega}$  verschwindet. Das Kontaktpotential wird auf jedem Punkt der Probe gemessen. Die Frequenz der Wechselspannung wird üblicherweise weit weg von  $\omega_0$  gewählt. Es können Frequenzen kleiner als  $\omega_0$  [59, 60], sowie auch größer als  $\omega_0$ , z. B. die zweite Resonanzfrequenz [61, 62], verwendet werden. Die Topografie der Probe und die Verteilung des Kontaktpotentials können demnach simultan aufgezeichnet werden.

Das Kontaktpotential kann auch ohne das Anlegen einer Wechselspannung gemessen werden. Für die aus der elektrostatischen Kraft resultierenden Frequenzverschiebung  $\Delta f_{es}$  des Cantilevers gilt:

$$\Delta f_{es} \propto -\frac{\partial F_{es}}{\partial z} = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 C_{ts}}{\partial z^2} (V_{ts} - V_{\Delta\phi})^2. \quad (2.18)$$

Diese Frequenzverschiebung hängt quadratisch von der angelegten Spannung ab. Da die anderen Beiträge zur totalen Frequenzverschiebung  $\Delta f$ , z. B. die van-der-Waals Wechselwirkung, nicht von der angelegten Spannung abhängen, zeigt  $\Delta f$  ebenfalls eine quadratische Abhängigkeit von  $V_{ts}$ . Durch die Aufnahme eines  $\Delta f(V_{ts})$  Spektrums bei konstantem Abstand und der Bestimmung des Extremums kann  $V_{\Delta\phi}$  gemessen werden.

Polarisationseffekte können zu einer Verschiebung des scheinbaren Kontaktpotentials führen [63]. Sie lassen sich durch eine Asymmetrie in den  $\Delta f(V_{ts})$ -Parabeln erkennen, da sie einen zusätzlichen biquadratischen Beitrag zur Frequenzverschiebung erzeugen.

## 3. $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostrukturen

Im folgenden Kapitel werden die beiden Materialien  $\text{SrTiO}_3$  und  $\text{LaAlO}_3$ , sowie die Grenzfläche in  $[001]$ -Richtung zwischen beiden Materialien vorgestellt. Außerdem wird das Modell der „polar catastrophe“ eingeführt, das die Bildung einer leitfähigen Grenzschicht zwischen den beiden Materialien erklärt.

### 3.1. $\text{LaAlO}_3$ und $\text{SrTiO}_3$

Die beiden Oxide  $\text{LaAlO}_3$  und  $\text{SrTiO}_3$  liegen in der Perovskitstruktur vor, deren allgemeine Formel für Oxide  $\text{ABO}_3$  lautet. Die kubische Einheitszelle dieser Struktur ist in Abbildung 3.1 zu sehen. In der Mitte des Würfels sitzt das  $A$ -Kation. Die  $B$ -

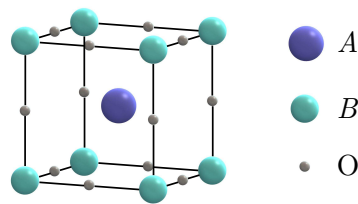


Abbildung 3.1.: Kubische Einheitszelle der Perovskit-Struktur  $\text{ABO}_3$ .

Kationen befinden sich an den Ecken der Einheitszelle und die Sauerstoffatome auf den Mitten der Würfelkanten. Betrachtet man den Kristall in  $[001]$ -Richtung, so ist er aus Ebenen bestehend aus  $\text{AO}$  und  $\text{BO}_2$  aufgebaut. Aufgrund der vorliegenden Oxidationszahlen:  $\text{La}^{3+}$ ,  $\text{Al}^{3+}$ ,  $\text{Sr}^{2+}$ ,  $\text{Ti}^{4+}$  und  $\text{O}^{2-}$ , sind diese Ebenen in  $\text{LaAlO}_3$  formell geladen:  $(\text{LaO})^+$  und  $(\text{AlO}_2)^-$ , in  $\text{SrTiO}_3$  sind sie dagegen ungeladen:  $(\text{SrO})^0$  und  $(\text{TiO}_2)^0$ .

$\text{LaAlO}_3$  liegt bei Temperaturen höher als 813 K in der kubischen Struktur vor. Bei 813 K erfolgt ein Übergang zu einer rhomboedrischen Struktur, in der die  $\text{AlO}_6$ -Oktaeder verdreht sind.  $\text{LaAlO}_3$  kann in der rhomboedrischen Phase durch eine pseudokubische Einheitszelle beschrieben werden [64], deren Gitterkonstante bei Raumtemperatur 3,79 Å beträgt.  $\text{LaAlO}_3$  ist ein Bandisolator mit einer Bandlücke von  $\approx 5,6$  eV [65].

$\text{SrTiO}_3$  besitzt bei Raumtemperatur eine kubische Struktur mit einer Gitterkonstanten von 3,90 Å [66]. Beim Unterschreiten einer Temperatur von 105 K geht  $\text{SrTiO}_3$  in

eine tetragonale Struktur über [67].  $\text{SrTiO}_3$  weist Elektrostriktion auf [68], d. h. durch Anlegen eines elektrischen Feldes wird der Kristall deformiert. Im Gegensatz zur Piezoelektrizität ist diese Deformation unabhängig von der Polarität des elektrischen Feldes.

Genau wie  $\text{LaAlO}_3$  ist  $\text{SrTiO}_3$  ein Bandisolator. Die indirekte Bandlücke beträgt  $\approx 3,25$  eV [69]. Aber  $\text{SrTiO}_3$  kann durch Dotierung in einen leitfähigen Zustand überführt werden. Eine elektrische Leitfähigkeit lässt sich zum Beispiel durch eine Dotierung mit Niob oder mit Sauerstoff-Fehlstellen induzieren [70]. Die Sauerstoff-Fehlstellen können beim Erhitzen des Kristalls im Vakuum entstehen. Die zusätzlich vorhandenen Ladungsträger können zu einer Verschiebung der Fermienergie in das Leitungsband führen [71]. Außerdem wird die Farbe von  $\text{SrTiO}_3$  durch die Konzentration von Sauerstoff-Fehlstellen beeinflusst, sie geht über von farblos-transparent zu tiefblau bis schwarz.

$\text{SrTiO}_3$  besitzt außergewöhnliche dielektrische Eigenschaften. Es ist ein Quantenparaelektrikum [72], das aufgrund von Nullpunktschwingungen auch für  $T \rightarrow 0$  K paraelektrisch bleibt. Die Dielektrizitätszahl  $\epsilon$  steigt bei sinkender Temperatur  $T$  stark an. Mit Barretts Formel [73] kann der Verlauf von  $\epsilon(T)$  beschrieben werden:

$$\epsilon(T) = \frac{M}{\frac{T_1}{2} \coth\left(\frac{T_1}{2T}\right) - T_0}, \quad (3.1)$$

mit  $M = 9,0 \cdot 10^4$  K,  $T_0 = 38$  K und  $T_1 = 84$  K [74]. Dies entspricht einem  $\epsilon$  von  $\approx 340$  bei  $T = 300$  K und  $\approx 2,2 \cdot 10^4$  bei  $T = 4,7$  K. Weiterhin führt das Anlegen eines elektrischen Feldes zu einer Abnahme der Dielektrizitätszahl, insbesondere bei tiefen Temperaturen [75].

## 3.2. $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Grenzfläche

Die Ähnlichkeit der Gitterkonstanten von  $\text{SrTiO}_3$  und  $\text{LaAlO}_3$  ist eine wichtige Voraussetzung, dass ein epitaktisches Aufwachsen von  $\text{LaAlO}_3$  auf ein  $\text{SrTiO}_3$ -Substrat möglich ist. Die Oberfläche des  $\text{SrTiO}_3$ -Substrats kann in der [001]-Richtung aus  $\text{TiO}_2$  oder  $\text{SrO}$  bestehen. Es ist möglich das  $\text{SrTiO}_3$ -Substrat so zu terminieren, dass die Oberfläche nur aus  $\text{TiO}_2$  besteht [76, 77]. Wächst man  $\text{LaAlO}_3$  auf solch ein  $\text{TiO}_2$ -terminiertes  $\text{SrTiO}_3$ -Substrat auf (siehe Abbildung 3.2), entsteht eine leitfähige Schicht [12]. Die Dicke des  $\text{LaAlO}_3$ -Films muss dabei drei Einheitszellen übersteigen [13].

Ein Modell zur Erklärung der Leitfähigkeit ist das Modell der „polar catastrophe“ [78]. An der Grenzfläche findet ein Übergang von ungeladenen Ebenen im  $\text{SrTiO}_3$  ( $\text{SrO}^0$ ,  $\text{TiO}_2^0$ ) zu geladenen Ebenen im  $\text{LaAlO}_3$  ( $\text{LaO}^+$ ,  $\text{AlO}_2^-$ ) statt. Diese Diskontinuität führt zum Aufbau eines elektrischen Potentials. Dieses Potential wächst mit der Dicke des  $\text{LaAlO}_3$ -Films linear an und könnte demnach beliebig groß werden. Die Divergenz

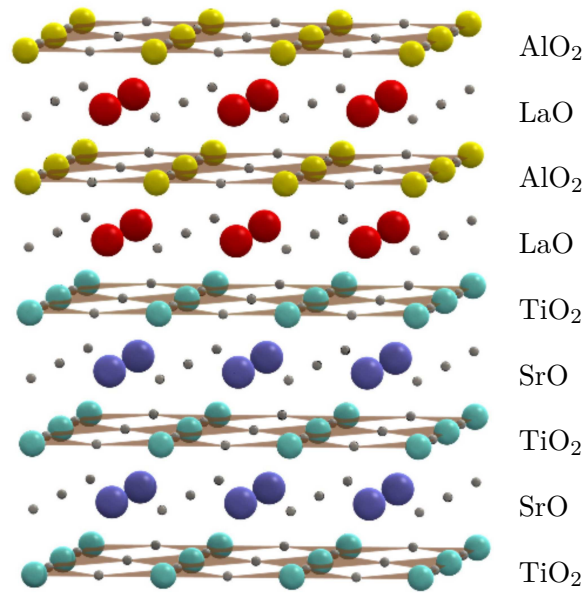


Abbildung 3.2.: Skizze der Schichtstruktur an der Grenzfläche zwischen  $\text{LaAlO}_3$  und  $\text{SrTiO}_3$ . La-Atome sind in rot, Al-Atome in gelb, Sr-Atome in blau, Ti-Atome in hellblau und O-Atome in grau dargestellt.

des Potentials kann durch eine elektronische Rekonstruktion verhindert werden, bei der im Mittel eine halbe Elektronenladung pro Einheitszelle in der Ebene aus der obersten  $\text{AlO}_2$ -Schicht an die Grenzfläche gelangt. Die Oxidationszahl von Titan in der letzten Lage des  $\text{SrTiO}_3$  ändert sich dadurch zu  $\text{Ti}^{3,5+}$ . Das elektrische Potential steigt dann innerhalb des  $\text{LaAlO}_3$ -Films in  $[001]$ -Richtung nicht mehr mit wachsender Filmdicke an. Die in den Bereich der Grenzschicht übertragenen Ladungsträger erzeugen  $n$ -Leitfähigkeit in einer dünnen Schicht nahe der Grenzfläche. Dieses Modell, das die Ausbildung der leitenden Schicht erklärt, ist stark vereinfachend. Zur genaueren Beschreibung des Mechanismus muss z. B. die Dichtefunktionaltheorie (DFT) hinzugezogen werden, da diese die Bandstrukturen berücksichtigt. DFT-Rechnungen zeigen, dass ab einer gewissen Filmdicke des  $\text{LaAlO}_3$  die O  $2p$ -Bänder der obersten  $\text{AlO}_2$ -Schicht und die Ti  $3d$ -Bänder der  $\text{TiO}_2$ -Schicht an der Grenzfläche an der Fermienergie überlappen [17, 79]. Somit entsteht eine leitfähige Schicht an der Grenzfläche.

Thiel *et al.* konnten zeigen, dass die Leitfähigkeit erst erzeugt wird, wenn die Dicke des  $\text{LaAlO}_3$ -Films drei Einheitszellen übersteigt [13]. Die leitfähige Schicht wird also von mindestens  $15 \text{ \AA}$  dickem  $\text{LaAlO}_3$  bedeckt. Diese isolierende Schicht muss bei rastersondenmikroskopischen Untersuchungen überwunden werden.

Für die elektronischen Eigenschaften der  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostruktur spielen die Aufwuchsbedingungen eine große Rolle. Je nach Sauerstoffhintergrunddruck bei der Deposition von  $\text{LaAlO}_3$  durch gepulste Laserablation variiert der Schichtwiderstand

um mehrere Größenordnungen. Für Strukturen, die bei einem Hintergrunddruck von  $p(\text{O}_2) \leq 10^{-6}$  mbar gewachsen wurden, ist der Schichtwiderstand am geringsten. Die Ursache hierfür sind Sauerstoff-Fehlstellen im  $\text{SrTiO}_3$  [80,81]. Diese erzeugen zusätzliche Ladungsträger, die den Effekt der Ladungsumverteilung an der Grenzfläche überdecken. Für Hintergrunddrücke von  $p(\text{O}_2) \geq 10^{-5}$  mbar bei der Deposition, wie bei den hier untersuchten Proben, kann die Leitfähigkeit nicht durch Sauerstoff-Fehlstellen erklärt werden und wird der elektronischen Rekonstruktion zugeordnet. Bei der weiteren Probenpräparation wurde darauf geachtet, dass keine Dotierung mit Sauerstoff-Fehlstellen erzeugt wird.

Die Ladungsträgerdichte an der Grenzfläche lässt sich durch elektrische Felder stark beeinflussen. Durch Anlegen einer Gate-Spannung an die Rückseite des  $\text{SrTiO}_3$ -Substrats kann eine Probe mit drei Einheitszellen  $\text{LaAlO}_3$  vom isolierenden Zustand in einen leitfähigen Zustand überführt werden [13]. Dieser Isolator-Metall-Übergang ist in umgekehrter Richtung für Proben mit vier oder mehr Einheitszellen  $\text{LaAlO}_3$  möglich [82].

Durch ein Topgate, ein Gate auf der Oberfläche des  $\text{LaAlO}_3$ -Films, wird die Grenzfläche aber bereits ohne das Anlegen einer Spannung beeinflusst. Bei Proben mit zehn Einheitszellen  $\text{LaAlO}_3$  können die Regionen unter dem  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ -Topgate bereits bei einer Gate-Spannung von 0 V isolierend sein [24]. Eine Verarmung der  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Grenzfläche, die dem  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ -Topgate zugeordnet wurde, wurde auch von anderen Gruppen beobachtet [83]. Der starke Einfluss von metallischen Topgates auf die Grenzfläche wurde durch DFT-Rechnungen bestätigt [84].

An  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostrukturen mit vier Einheitszellen  $\text{LaAlO}_3$  wurden bereits tunnelspektroskopische Untersuchungen durchgeführt [17]. Ein Vergleich des normierten differentiellen Leitwerts mit DFT-Rechnungen lieferte eine gute Übereinstimmung (Abbildung 3.3). Für die Berechnungen wurde die Methode der lokalen Dichtenäherung (LDA) verwendet. Dabei lieferte der Vergleich des NDC mit LDA+ $U$  Resultaten eine deutlich bessere Übereinstimmung in den charakteristischen Merkmalen der Zustandsdichte als die reine LDA Rechnung. Die zusätzlich notwendige Coulomb-Abstoßung  $U$  lässt darauf schließen, dass Korrelationen an der Grenzfläche eine wichtige Rolle spielen. Durch diesen Vergleich konnte außerdem festgestellt werden, dass ein Tunneln in Ti 3d-Zustände stattfindet.

In  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostrukturen wurde eine Koexistenz von Supraleitung und Magnetismus gefunden. In Referenz [20] zeigten magnetfeldabhängige Transport-Messungen und Messungen der kritischen Temperatur ein hysteretisches Verhalten. Dieses wird durch eine ferromagnetische Ordnung erzeugt, die parallel zur Supraleitung existiert. Außerdem fanden sich Hinweise auf zwei verschiedene Elektronensysteme, denen die Supraleitung bzw. der Ferromagnetismus zugeschrieben werden kann. Durch Messungen mit Hilfe von Torque-Magnetometrie konnte ebenfalls die Existenz von Magnetismus parallel zum supraleitenden Zustand nachgewiesen werden [21]. Mit Hilfe eines SQUID (superconducting quantum interference device) konnten ferromagnetische Bereiche in der Größenordnung einiger  $\mu\text{m}$  innerhalb eines supraleitenden Hintergrunds

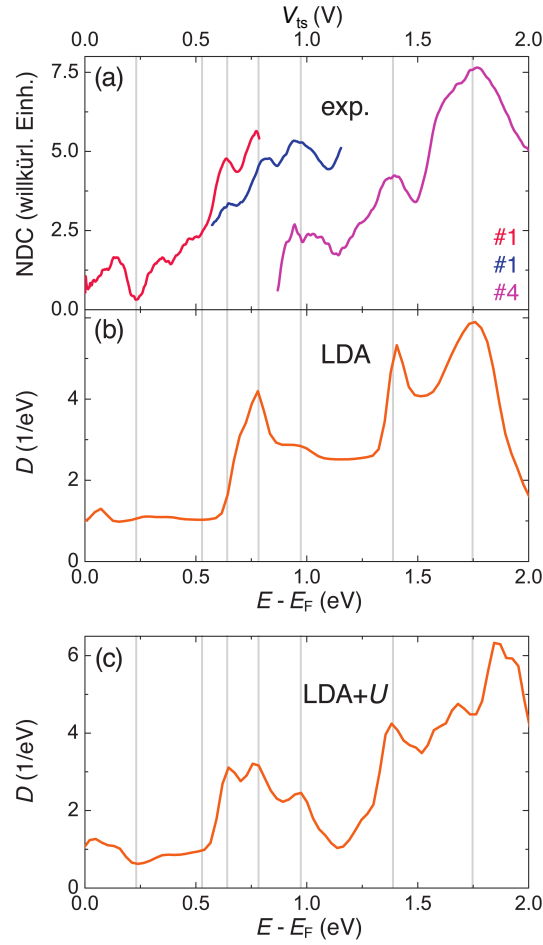


Abbildung 3.3.: Vergleich des aus tunnelspektroskopischen Messungen bestimmten normierten differentiellen Leitwerts (NDC) mit mittels DFT berechneten Zustandsdichten  $D$ . (a) zeigt den gemessenen NDC aufgenommen bei drei verschiedenen Spitzen-Proben-Abständen und auf zwei verschiedenen Proben. Die Messungen wurden bei 4,7 K durchgeführt. In (b) und (c) sind die mittels LDA bzw. LDA+ $U$  berechneten Ti 3d-Zustandsdichten zu sehen. Die Positionen charakteristischer Merkmale im NDC sind in allen drei Diagrammen mit grauen Linien markiert. (Aus Referenz [17].)

abgebildet werden [22]. In Referenz [23] wurde der magnetische Zustand mit Hilfe von DFT-Rechnungen untersucht. Pavlenko *et al.* kamen zu dem Ergebnis, dass sowohl der Magnetismus als auch die Supraleitung durch Ti 3d-Zustände an der Grenzfläche erzeugt werden. Der Magnetismus kommt allerdings erst durch eine von Sauerstoff-Fehlstellen induzierte Spin-Aufspaltung der besetzten Zustände zustande. Dies könnte

das Auftreten von magnetischen Bereichen an Stellen hoher Fehlstellen-Konzentration erklären [23].

Eine weitere interessante Eigenschaft der  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostruktur, eine negative elektronische Kompressibilität, wurde durch Messung der Kapazität zwischen dem Elektronensystem an der Grenzfläche und einer Elektrode aus  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  oder Gold auf dem  $\text{LaAlO}_3$ -Film aufgezeigt [24]. Für die Messungen wurden  $\text{LaAlO}_3$ -Filmdicken von zehn und zwölf Einheitszellen verwendet. Bei einer Erniedrigung der Ladungsträgerdichte an der Grenzfläche durch eine Gate-Spannung  $V_g$  am Topgate trat eine deutliche Erhöhung der Kapazität  $C$  zwischen Grenzfläche und Topgate auf. Eine solche Kapazitätsmessung ist in Abbildung 3.4(a) zu sehen. Die Erhöhung der Kapazität überstieg 40% der geometrischen Kapazität  $C_{\text{geo}}$  des Aufbaus. Sie ist folglich um eine Größenordnung höher als die Kapazitätserhöhung in Si-Heterostrukturen [25]. Die Kapazität ist eine Serienschaltung aus der geometrischen Kapazität und der

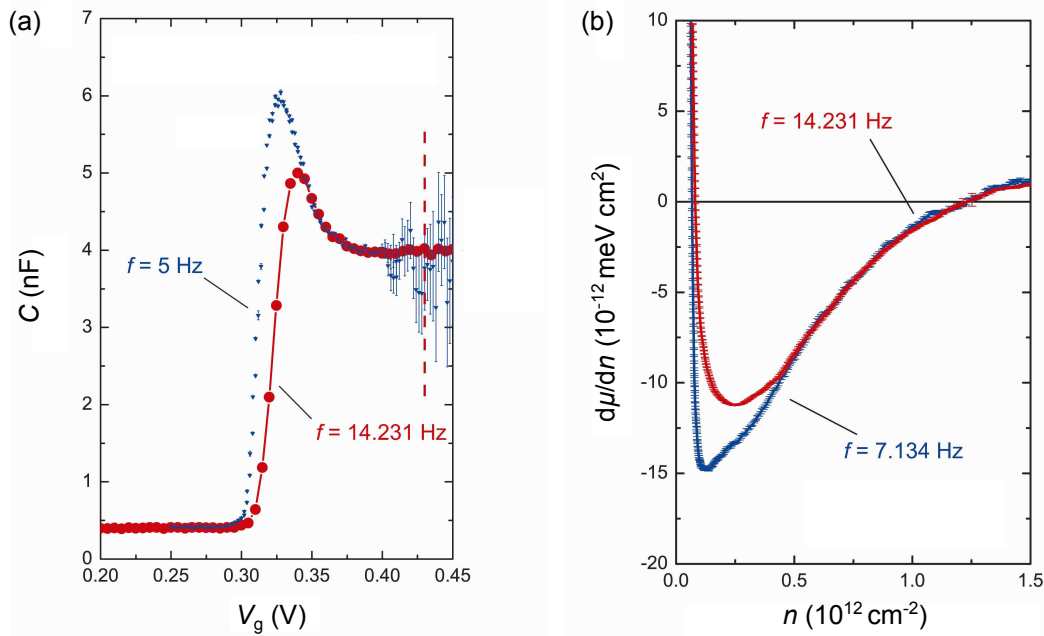


Abbildung 3.4.: Messung der elektronischen Kompressibilität einer  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostruktur mit zehn Einheitszellen  $\text{LaAlO}_3$ . Die Messungen wurden bei 4,2 K und mit verschiedenen Frequenzen  $f$  durchgeführt. (a) Bei einer Erniedrigung der Ladungsträgerdichte  $n$  durch eine negative Gate-Spannung  $V_g$  am Topgate tritt eine deutliche Erhöhung der Kapazität  $C$  zwischen Grenzfläche und Topgate auf. (b) Die Inverse der elektronischen Kompressibilität  $d\mu/dn$  der Grenzfläche wurde aus Feld-Penetrations-Messungen bestimmt. (Aus Referenz [24].)

Quanten-Kapazität  $C_q$ :

$$\frac{1}{C} = \frac{1}{C_{\text{geo}}} + \frac{1}{C_q} = \frac{1}{C_{\text{geo}}} + \frac{1}{Se^2(dn/d\mu)}, \quad (3.2)$$

mit der Querschnittsfläche  $S$  des Kondensators. Die Erhöhung der Kapazität bedeutet somit ein negatives  $C_q$  und damit auch eine negative elektronische Kompressibilität.

Die negative Kompressibilität hat eine Überabschirmung von elektrischen Feldern durch die Grenzfläche zur Folge. Diese Überabschirmung kann durch eine Feld-Penetrations-Messung untersucht werden [26, 29]. Dazu wurde eine kleine Wechselspannung an das Backgate angelegt [24]. Der resultierende Wechselstrom am Topgate  $I_y$  ist ein Maß für das Feld, das die Grenzfläche durchdringt.  $I_y$  ist für kleine Frequenzen proportional zur Inversen der Kompressibilität:  $I_y \propto d\mu/dn$  [85]. Das Ergebnis der Messung ist in Abbildung 3.4(b) gezeigt. Die Ladungsträgerdichte  $n$  wurde aus einer Integration der Kapazität zwischen Grenzfläche und Topgate bestimmt [24]. Für sehr kleine Ladungsträgerdichten wird die Kompressibilität negativ.

Eine negative elektronische Kompressibilität bedeutet, dass das chemische Potential an der Grenzfläche mit sinkender Ladungsträgerdichte ansteigt. In Halbleiter-Heterostrukturen wird die negative elektronische Kompressibilität durch Elektron-Elektron-Wechselwirkungen erzeugt [29]. Im Fall der  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostruktur ist die Ursache der negativen Kompressibilität noch nicht vollständig geklärt.



## 4. Der verwendete Versuchsaufbau

Das für die in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Untersuchungen verwendete Rastersondenmikroskop ist Bestandteil einer Ultrahochvakuumanlage [86]. Ein Teil der Anlage wird von flüssigem Helium gekühlt, so dass Mikroskop und Probe eine Temperatur von 4,7 K erreichen.

### 4.1. Vakuumsystem

Das verwendete Vakuumsystem ist in Abbildung 4.1 skizziert. Das Vakuumsystem besitzt drei Hauptbestandteile: die UHV-Kammer, zwei Bälge mit einem Gestänge im Inneren und den Präparationsteil, der in dieser Skizze nicht eingezeichnet ist. Die UHV-Kammer und die beiden Bälge werden mittels einer Ionenpumpe abgepumpt, so dass ein Druck von etwa  $1 \cdot 10^{-10}$  mbar bei Raumtemperatur erreicht wird. Eine Fotografie des Vakuumsystems ist in Abbildung 4.2 zu sehen.

Die UHV-Kammer ist oben und unten mit einem Balg verbunden. Am Ende des oberen Balgs befindet sich ein Abschlussflansch mit Leitungsdurchführungen. Hier werden die Messsignale aus dem Vakuumsystem geführt. Der untere Balg wird von einem Kupferzylinder abgeschlossen. Mikroskop und Probe werden an diesem Kupferzylinder befestigt. Der Probenträger wird mit zwei Blattfedern an den Kupferzylinder angedrückt, ist aber elektrisch von diesem isoliert (Abbildung 4.3). Der Einbau des Probenträgers wird auf Sicht in der UHV-Kammer durchgeführt.

Der obere Flansch und der Kupferzylinder sind durch ein Pendelgestänge verbunden. Dieses lässt sich nach oben und unten bewegen. Dabei wird ein Balg komprimiert und der andere gedehnt. Diese Konstruktion ermöglicht es, den Kupferzylinder nach dem Einbau der Probe in einen Kryostaten abzusenken. Das untere Ende des Kupferzylinders taucht direkt in das flüssige Helium ein, so dass eine hohe Kühlleistung erreicht wird. Mikroskop und Probe werden durch den Kupferzylinder gekühlt und erreichen eine zeitlich stabile Temperatur von 4,7 K.

Der Präparationsteil der Anlage besteht aus zwei Kammern: der Load-Lock-Kammer und der Präparationskammer (Abbildung 4.4). Beide Kammern werden von einer Turbomolekularpumpe gepumpt, die sich an der Load-Lock-Kammer befindet. Die Probe wird über die Load-Lock-Kammer in die Präparationskammer eingeschleust. Dort kann sie durch eine Halogenlampe geheizt werden. Diese ist in Abbildung 4.4 links zu sehen. Während des Heizens kann Sauerstoff über eine Druckdose in die

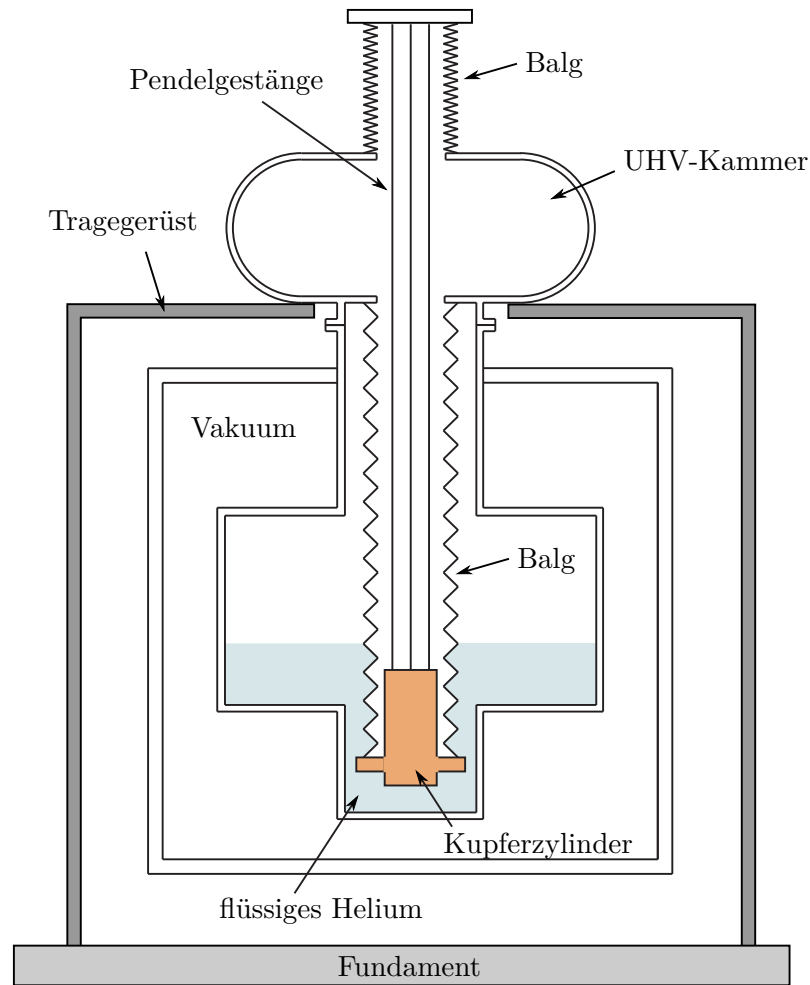


Abbildung 4.1.: Übersichtsskizze der Vakuumanlage mit Heliumkryostat.

Präparationskammer geleitet werden. Ist die Probenpräparation beendet, wird die Probe in den Manipulator, der zur UHV-Kammer reicht, eingebaut. Die Probe kann anschließend zum Mikroskop geschleust werden.

Da das Mikroskop sehr empfindlich auf Umgebungsschwingungen reagiert, ist das Vakuumsystem in einer akustischen Abschirmkammer aufgebaut. Zur zusätzlichen Schwingungsisolierung steht das Tragegerüst, auf dem die UHV-Kammer befestigt ist, auf einem 30 Tonnen schweren eigenem Betonfundament. Die Anlage ist dadurch vom Rest des Gebäudes weitgehend mechanisch isoliert.



Abbildung 4.2.: Fotografie der Vakuumanlage. Es sind die UHV-Kammer, die Ionenpumpe und der untere Balg zu sehen. Zum Einkühlen der Anlage wird der Heliumkryostat (links im Bild) in das Aluminiumgestänge eingebaut, vom Boden abgehoben und von unten an die UHV-Kammer gedrückt. Dann kann der untere Balg in den Kryostaten abgesenkt werden.

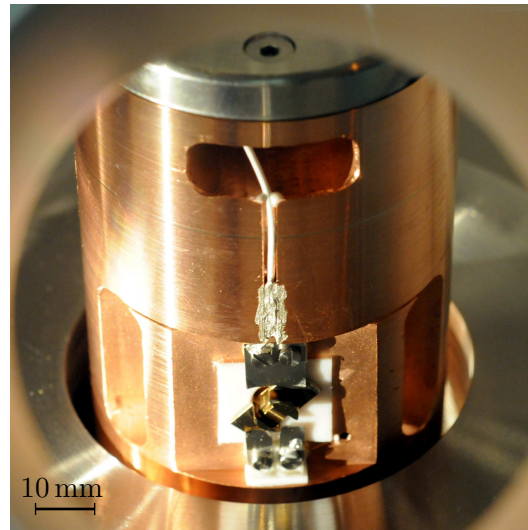


Abbildung 4.3.: Kupferzylinder mit eingebautem Probenträger. Der Probenträger wird von zwei Blattfedern an den Kupferzylinder angedrückt. Eine Teflonplatte isoliert die Probe elektrisch von dem Kupferzylinder. (Fotografie von K. Wiedenmann.)

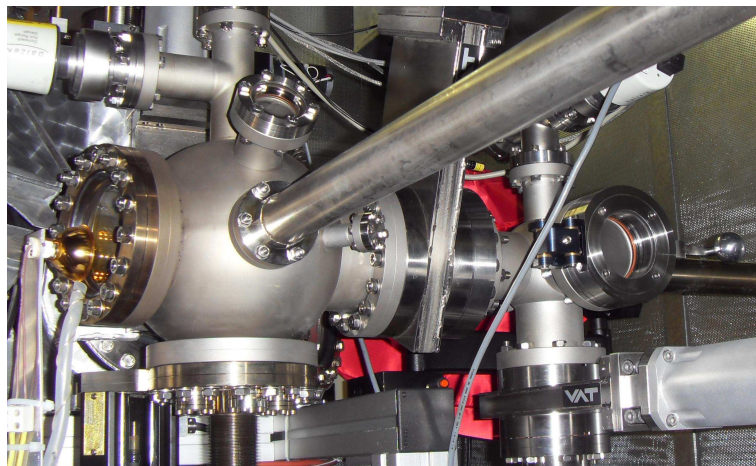


Abbildung 4.4.: Präparationsteil der Anlage mit der Load-Lock-Kammer (rechts im Bild) und der Präparationskammer (links). Die Präparationskammer besitzt einen Durchmesser von etwa 20 cm.

## 4.2. Rastersondenmikroskop

Bei dem in der vorliegenden Arbeit verwendeten Mikroskop handelt es sich um ein kombiniertes Rastertunnel- und Rasterkraftmikroskop (Abbildung 4.5). Zur Groban-

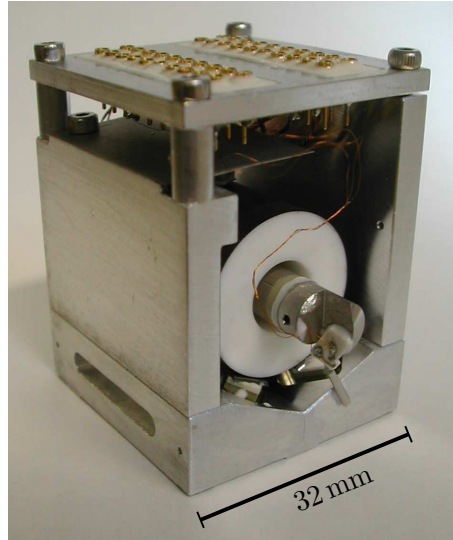


Abbildung 4.5.: Fotografie des Rastersondenmikroskops.

näherung der Spitze an die Probe dient ein Scherpiezoantrieb [35, 87]. Dieser besteht aus fünf Stapeln von Scherplatten aus Blei-Zirkonat-Titanat-Piezokeramik (Material PIC 255, PI Ceramic [88]), die einen mit Graphit beschichteten Macorzyylinder schrittweise bewegen. Der verwendete Aufbau ermöglicht nicht nur eine Grobannäherung der Spitze, sondern auch ein seitliches Verschieben der Spitze gegenüber der Probe durch eine Drehung des Macorzyinders.

Die Rastereinheit ist durch einen Röhrenchenpiezo (siehe Kapitel 2) aus Blei-Zirkonat-Titanat realisiert (Material EBL#2 [89]). Dieser ist im Inneren des Macorzyinders befestigt. Als Kraftsensor wird ein qPlus-Sensor verwendet.

### 4.3. qPlus-Sensor

Der Kraftsensor des Mikroskops basiert auf einer Quarz-Stimmgabel. Eine Zinke der Stimmgabel wird an einer großen Masse befestigt. Die andere Zinke kann frei schwingen und bildet den Cantilever (qPlus-Sensor, Abbildung 4.6) [90, 91]. Die verwendete Stimmgabel ist vom Typ E158 (DS26) der Firma Micro Crystal [92] und hat bei Raumtemperatur eine Resonanzfrequenz von 32,768 kHz und eine Federkonstante von  $1800 \text{ N m}^{-1}$ . Die Verklebung der einen Stimmgabelzinke mit einem Aluminiumoxid-Substrat wurde mit dem Zweikomponenten-Epoxidharz-Kleber Loctite 1C Hysol (EPK-1C) [93] realisiert. Aufgrund der im Vergleich zu Silizium Cantilevern relativ großen Ausmaße der Stimmgabel können zahlreiche verschiedene Materialien als Spitzen verwendet werden. In den durchgeführten Messungen wurden ausschließlich





Abbildung 4.6.: Fotografie eines qPlus-Sensors mit einer Spitze aus Iridium. Der Sensor besteht aus einer Quarz-Stimmgabel mit Gold-Kontakten, deren eine Zinke auf einem Aluminiumoxid-Substrat fixiert ist. Am Ende der freien Zinke ist die Spitze festgeklebt (links oben im Bild).

Spitzen aus Iridium verwendet. Eine solche Iridium-Spitze besteht aus einem Iridium-Splitter, der mittels eines Seitenschneiders von einem Iridium-Draht abgequetscht wird. Dieser wird unter dem Lichtmikroskop mit dem elektrisch leitfähigen Zweikomponenten-Epoxidharz-Klebstoff EPO-TEK E4110 [94] an das Ende der freien Zinke der Stimmgabel geklebt. Abbildung 4.7 zeigt eine solche Spitze. Durch die zusätzliche

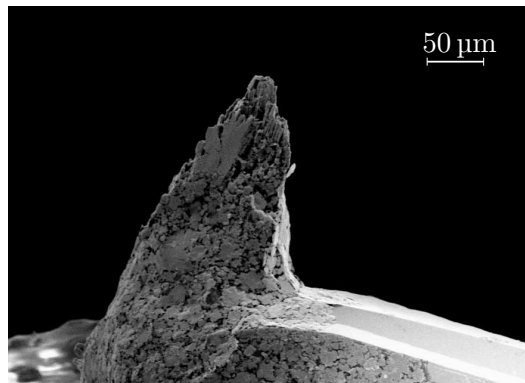


Abbildung 4.7.: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahme der Iridium Spitze eines qPlus-Sensors. (Aufnahme von K. Wiedenmann.)

Masse der Spitze und des Klebstoffs wird die Resonanzfrequenz des Cantilevers auf Werte im Bereich von 15 kHz bis 25 kHz reduziert. Ein typischer Wert der Güte im UHV und bei 4,7 K ist 10 000.

Die hohe Federkonstante der Quarz-Stimmgabel macht es möglich, eine kleine Schwingungsamplitude einzusetzen. Dies erhöht die Sensitivität für kurzreichweitige Kräfte (siehe Abbildung 2.10) und führt zu einem besseren Auflösungsvermögen.

Die Detektion der Auslenkung der Stimmgabel erfolgt über den piezoelektrischen Effekt. Dieser wurde 1880 von den Brüdern Curie entdeckt. Der piezoelektrische Effekt beschreibt die Änderung einer Polarisation  $\mathbf{P}$  aufgrund einer Verformung des Materials. Beim inversen piezoelektrischen Effekt wird durch das Anlegen eines elektrischen Feldes ein Material verformt. Der Zusammenhang zwischen der Polarisation und der mechanischen Spannung  $\sigma$  ist durch folgende Gleichung gegeben:

$$P_i = d_{ijk}\sigma_{jk}, \quad (4.1)$$

mit den piezoelektrischen Koeffizienten  $d_{ijk}$ . Hier bezeichnen  $P_i$  die Komponenten des Polarisationsvektors und  $\sigma_{jk}$  die Komponenten des Spannungstensors. Für diese gilt:  $\sigma_{jk} = \sigma_{kj}$ . Diese Symmetrie kann auf die piezoelektrischen Koeffizienten übertragen werden:  $d_{ijk} = d_{ikj}$ . Dadurch reduziert sich die Anzahl der unabhängigen Komponenten des Tensors von 27 auf 18. Für die beiden Tensoren kann nun eine reduzierte Matrix Schreibweise verwendet werden. Die Indizes transformieren wie folgt:

Tensor Schreibweise:	11	22	33	23, 32	31, 13	12, 21
Matrix Schreibweise:	1	2	3	4	5	6

Bei Raumtemperatur liegt Quarz in der trigonalen Kristallstruktur vor (siehe Abbildung 4.8(a)). Durch die vorliegenden Symmetrieeigenschaften ergibt sich folgende Gleichung [95]:

$$\begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} & -2d_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{pmatrix}, \quad (4.2)$$

mit  $d_{11} = 2,3 \text{ pC N}^{-1}$  und  $d_{14} = -0,67 \text{ pC N}^{-1}$  bei Raumtemperatur [96–98]. Eine mechanische Spannung in  $x$ -Richtung erzeugt eine Polarisation in  $x$ -Richtung. Eine mechanische Spannung in  $y$ -Richtung erzeugt ebenfalls eine Polarisation in die  $x$ -Richtung. Die  $x$ -Achse von Quarz wird deshalb auch elektrische Achse genannt.

In der vorliegenden Arbeit wird eine Stimmgabel im sogenannten  $xy'$ -Schnitt verwendet. Die  $y'$ -Achse, die Achse parallel zu den Stimmgabelzinken, und die  $z'$ -Achse, die Achse senkrecht zur Zinken-Ebene, sind um wenige Grad gegenüber den Kristallachsen gekippt. Dieser Schnitt gewährleistet eine hohe Frequenzstabilität bei Raumtemperatur sowie bei tiefen Temperaturen [86]. Die je vier Seitenflächen der beiden Zinken sind mit Goldelektroden bedeckt (Abbildung 4.6). Jeweils gegenüberliegende Elektroden sind elektrisch verbunden (Abbildung 4.8(b)). Die mechanischen Spannungen, die bei der Schwingung des Sensors entstehen, führen zu Ladungen, die durch die Goldelektroden aufgesammelt werden. An den Goldkontakten der Stimmgabel addieren sich diese Ladungen. Sie können an den Kontakten des Aluminumoxid-Substrats gemessen werden (siehe Kapitel 4.5).

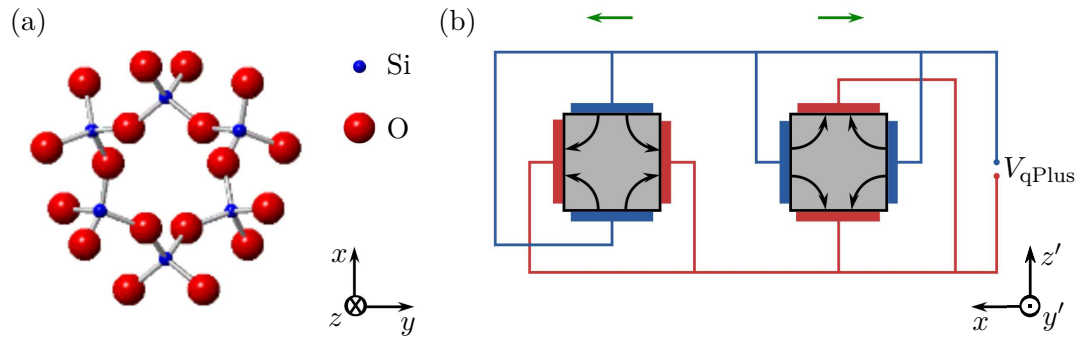


Abbildung 4.8.: Struktur von Quarz und Anordnung der Elektroden einer Quarzstimmgabel. In (a) ist die trigonale Kristallstruktur des Quarz (chemische Formel  $\text{SiO}_2$ ) zu sehen. (b) zeigt einen Blick auf die Stirnseite der Quarzstimmgabel (grau). Die Achsen  $y'$  und  $z'$  sind im Vergleich zu den Achsen aus (a) um wenige Grad gekippt. Die Goldelektroden sind für eine bessere Unterscheidung in verschiedenen Farben dargestellt. Es sind außerdem die elektrischen Feldlinien im Quarz eingezeichnet, die bei einer Auslenkung der Zinken in Richtung der grünen Pfeile entstehen.

#### 4.4. Backgate Probenträger

In der vorliegenden Arbeit wird das Kontaktpotential der  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Grenzschicht in Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte gemessen. Zur Änderung der Ladungsträgerdichte ist der Einsatz eines Backgates nötig. Deshalb wird der in [87] entwickelte, zweigeteilte Probenträger verwendet (Abbildung 4.9). Er besteht aus den zwei Hälften eines Standardprobenträgers, der mit einer Diamantdraht-Säge (Durchmesser 0,3 mm) geteilt wurde. Die beiden Hälften, wobei eine davon um ca. 0,5 mm



Abbildung 4.9.: Zweigeteilter Probenträger für Backgate Messungen.



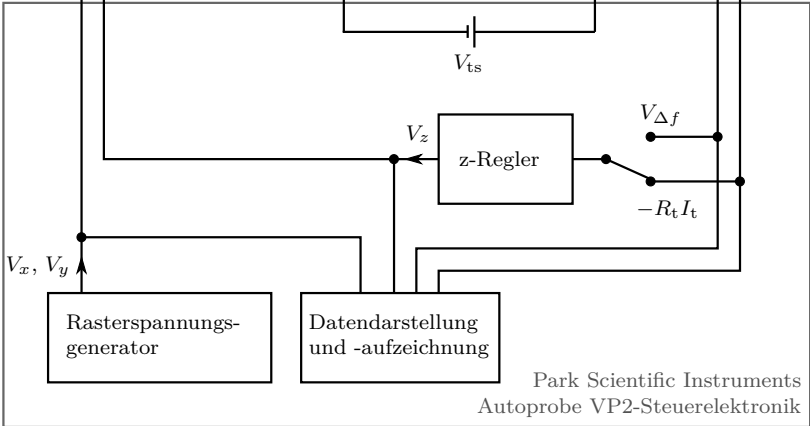
gekürzt wurde, werden mit nichtleitfähigen Epoxidharz-Kleber verbunden. Der Kleber wird so verteilt, dass er den Spalt komplett ausfüllt. Außerdem wird auf die gekürzte Hälfte eine Kleberschicht aufgebracht. Diese isoliert die Probenträgerhälfte elektrisch von der Rückseite des  $\text{SrTiO}_3$ -Substrats, die mit Silber bedeckt ist. Der Probenträger besitzt nun zwei Kontakte zur Probe.

## 4.5. Messaufbau

Abbildung 4.10 zeigt einen Übersichtsplan der wichtigsten elektrischen Komponenten des Rastersondenmikroskops. Es besteht aus den folgenden Hauptkomponenten: dem Controller, der Tunnelstromdetektion, der Cantilever-Schwingungsdetektion, dem Gate-Spannungs-Aufbau und dem eigentlichen Mikroskop. Bei dem Controller des Rastersondenmikroskops handelt es sich um eine Park Scientific Instruments Auto-probe VP2 Steuerelektronik [99]. Diese erzeugt die Hochspannungen für die Raster-einheit  $V_x$  und  $V_y$ . Eine zugehörige Software zeichnet die gemessenen Daten auf und stellt sie am Bildschirm dar. Außerdem ist hier die Regeleinheit für die Höheneinstellung des Sensors realisiert. Die Steuerelektronik erzeugt weiterhin die Spitzen-Proben Spannung  $V_{ts}$ . Nach einer Tiefpassfilterung wird  $V_{ts}$  an den Kontakt der Stimmgabel angelegt, der mit der Spitze elektrisch verbunden ist.

Der Tunnelstrom wird an der Probe detektiert. Die Tunnelstromdetektionseinheit besteht aus einer Operationsverstärkerschaltung, die nahe an den Leitungsdurchführungen des Vakuumsystems montiert ist (Schaltplan siehe Seite 69). Hier wird der Tunnelstrom je nach Größe des eingebauten Widerstands  $R_t$  verstärkt und tiefpassgefiltert. Je nach Anwendung kann es sinnvoller sein, den Tunnelstrom nicht an der Probe sondern an der Spitze zu messen (Schaltplan Seite 67). In diesem Fall muss auf eine parallele AFM-Messung verzichtet werden. Die Gate-Spannung wird von einer Spannungsquelle des Modells 2410 1100V Sourcemeter von Keithley [100] erzeugt. Mit diesem können Spannungen im Bereich von  $\pm 1100$  V generiert werden. Als Gate dient der Silberkleber auf der Rückseite des  $\text{SrTiO}_3$ -Substrats.

Das Schwingungssignal der Quarz-Stimmgabel wird mit einem *in situ* Vorverstärker direkt am Mikroskop verstärkt (Schaltplan siehe Seite 64). Das resultierende Signal  $V_q$  wird nach einer weiteren Verstärkung in der Abschirmkammer (siehe Seite 66) zu der am Lehrstuhl entwickelten und gebauten Amplitudenregelungselektronik geleitet (Schaltplan Seite 71). Dort wird das Signal mit einem externen Filter SR650 [101] gefiltert. Das zu  $V_q$  proportionale Signal gelangt zur Phasenregelschleife und zur Amplitudenregelschleife. Letztere vergleicht die Schwingungsamplitude mit der eingestellten Sollamplitude und passt die Amplitude der Anregungsspannung  $V_{drive}$  so an, dass die Stimmgabel mit einer konstanten Amplitude schwingt. Außerdem erzeugt die Amplitudenregelschleife eine Phasenverschiebung von  $-90^\circ$  zwischen der Stimmgabelschwingung und der Anregungsschwingung. Durch diese positive Rückkopplung



kroskops. (Skizze erstellt in Anlehnung an [87].)

schwingt sich die Stimmgabel selbsterregend bei ihrer Eigenfrequenz ein. Die Frequenzverschiebung  $\Delta f$  wird in der Phasenregelschleife (phase locked loop, PLL [102]) gemessen.

## 4.6. Instrumentelle Weiterentwicklungen

Der von M. Breitschaft neuentwickelte Motor wurde kurz vor Beginn meiner Doktorarbeit in die Vakuumanlage integriert [87]. Im Laufe meiner Doktorarbeit hat sich die Zuverlässigkeit des Motors immer weiter reduziert. So musste der Schlitten teilweise erst gedreht oder zurückgezogen werden, bevor eine Fortsetzung der Annäherung an die Probe möglich war. Eine mögliche Ursache der Verschlechterung könnten die selbstgeklebten Piezostapel (Abbildung 4.11(a)) sein. Die Festigkeit der Stapel könnte

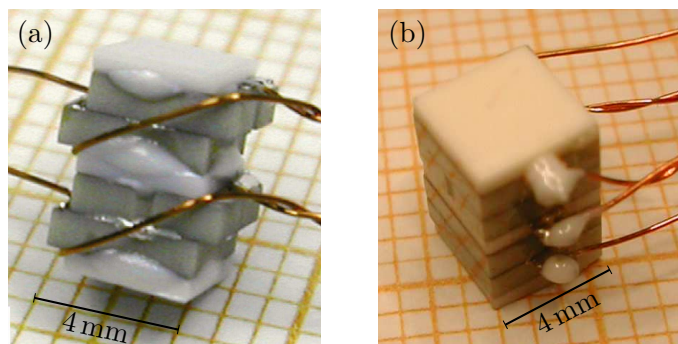


Abbildung 4.11.: Verschiedene Stapel aus vier Scherpiezos. (a) Von Hand geklebter Piezostapel, (b) von PI Ceramic [88] gefertigter Piezostapel. (Teilbild (a) entnommen aus [87])

unter den wiederholten Temperaturzyklen gelitten haben. Zur Verbesserung der Situation habe ich diese Stapel durch industriell gefertigte Stapel ersetzt. Die von PI Ceramic [88] gefertigten Stapel bestehen aus Scherplatten aus dem Material PIC 255 und 0,6 mm dicken  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Isolationsplatten. Die Elektroden der Scherplatten wurden mit Kupferdrähten mit Polyimid-Isolierung (Grad 2 [103]) kontaktiert und in den Mikroskop-Rahmen eingebaut. Der Neubau war erfolgreich, da die Zuverlässigkeit des Motors bisher nicht nachgelassen hat.

Im Zuge des Austauschs der Piezostapel wurde auch der Schlitten ersetzt. Zur Kontaktierung der Stimmgabel wurden dünnere Polyimid-Lackdrähte mit einem Durchmesser des Kupfers von 0,05 mm verwendet (Abbildung 4.12). Eine Kontaktierung der Stimmgabel mit möglichst dünnen Drähten ist wünschenswert, da dann weniger Schwingungen über die Drähte in die Stimmgabel eingekoppelt werden.

Bei den untersuchten oxidischen Heterostrukturen befinden sich trotz Ausheizen der Proben Adsorbate auf der Oberfläche, die mit der Zeit die Spitze kontaminieren. Ei-

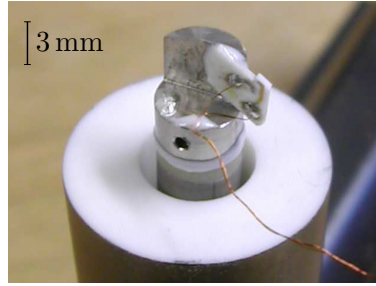


Abbildung 4.12.: Scannerkopf mit besonders dünnen Drähten. Die Drähte werden verdrillt zum Deckel des Rastersondemikroskops geführt.

ne Verbesserung der Spitze kann durch Feldemission erreicht werden (siehe Kapitel 5.4). Manchmal wäre es aber hilfreich, die Qualität der Spitze durch eine Feldemission auf einer metallischen Probe zu verbessern. Im jetzigen Aufbau müsste dafür die  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Probe aus dem gesamten Vakuumsystem ausgeschleust werden, um Platz für die metallische Probe zu schaffen. Dies würde eine Verschlechterung der Probenoberfläche bedeuten, da die Probe erneut Luft ausgesetzt wäre. Das Verfahren ist so nicht praktikabel.

Eine Lösung der Problems ist die Möglichkeit zur Lagerung von Proben im UHV. Da der Manipulator in der UHV-Kammer nur einen begrenzten Bewegungsraum besitzt, bietet sich das Pendelgestänge zur Befestigung des Probenhalters an. Das entwickelte Probenmagazin ist in Abbildung 4.13 zu sehen. Das Probenmagazin wird an einem bereits vorhandenen Loch in einem Hitzeschild des Pendelgestänges befestigt. Die

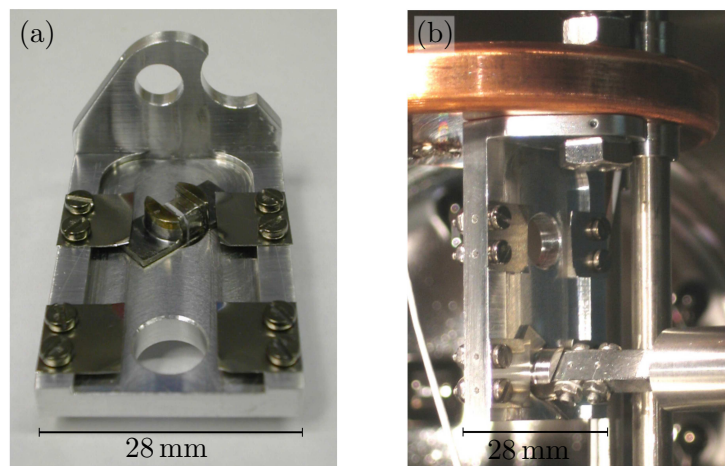


Abbildung 4.13.: Probenmagazin zur Aufbewahrung von Proben im UHV. (a) Fotografie des Probenmagazins, (b) Fotografie des im Pendelgestänge eingebauten Probenmagazins.

Befestigung erfolgt mit einer Schraube, die auf der Gegenseite mit zwei gekonterten Muttern fixiert wird. Um ein Verdrehen des Magazins beim Einbau einer Probe zu verhindern, besitzt die Befestigungsplatte eine halbrunde Aussparung, die die vordere Stange des Pendelgestänges teilweise umschließt. Die Befestigung des Probenträgers funktioniert wie beim Kupferzylinder mit zwei Blattfedern. Die Löcher, in die die Proben eingebaut werden, wurden so angeordnet, dass der Probenträger gerade so an der vorderen Stange des Pendelgestänges vorbei geführt werden kann, das Loch aber noch in Reichweite des Manipulators liegt. In das Magazin können zwei Proben eingebaut werden. In ihm kann also eine Probe zur Reinigung der Spitze dauerhaft im UHV aufbewahrt werden. Die gerade untersuchte Oxid-Probe kann dann in den freien Platz eingebaut werden. Das Probenmagazin wurde in der Vakuumanlage angebracht und ein Probenträger konnte eingebaut werden.

Weitere instrumentelle Entwicklungen, die im vorhandenen Aufbau nicht umgesetzt sind, finden sich in Anhang C. Während meiner Doktorarbeit habe ich einen neuen Mikroskopkopf getestet und Vorversuche für einen neuen Probenträger durchgeführt.

## 5. Experimentelle Untersuchungen an $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostrukturen

In diesem Kapitel werden die experimentellen Ergebnisse der Untersuchungen an den  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostrukturen, die mit dem vorgestellten Rastersondenmikroskop erzielt wurden, dargelegt. Zuerst wird die Probenherstellung und die Probenpräparation vorgestellt. Außerdem wird die Spitzenpräparation und die Ergebnisse der Abbildung der Probenoberfläche dargestellt. Das Kapitel schließt mit den Ergebnissen der Kelvin-Sonden Messungen ab. Diese lassen Rückschlüsse auf die elektronische Kompressibilität der Grenzfläche zu [30].

### 5.1. Probenherstellung

Die Probenherstellung beginnt mit der Vorbereitung der  $\text{SrTiO}_3$ -Substrate. Es wurden (001) orientierte einkristalline  $\text{SrTiO}_3$ -Substrate der Firma CrysTec [104] mit den Abmessungen  $5 \times 5 \times 1 \text{ mm}^3$  verwendet. Um eine leitfähige Schicht an der  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Grenzfläche zu erhalten, ist eine  $\text{TiO}_2$ -Terminierung der  $\text{SrTiO}_3$ -Substrate nötig. Dies wurde durch die Verwendung des etablierten Rezepts zur  $\text{SrTiO}_3$ -Terminierung [77] erreicht.

Die  $\text{LaAlO}_3$ -Filme wurden mittels gepulster Laser-Ablation (PLD) nach dem von S. Thiel am Lehrstuhl etablierten Verfahren [105] auf das terminierte Substrat gewachsen. Der verwendete KrF Excimer Laser (LPX300, [106]) besitzt eine Wellenlänge von  $\lambda = 248 \text{ nm}$  und eine Pulslänge von 25 ns. Die Film-Deposition fand bei einem Sauerstoffhintergrunddruck von  $p(\text{O}_2) \approx 1 \cdot 10^{-4} \text{ mbar}$  und einer Substrattemperatur von ca.  $780^\circ\text{C}$  statt. Das Filmwachstum wurde mittels RHEED (Reflection High-Energy Electron Diffraction) überwacht. Die Zahl der gewachsenen Einheitszellen kann an den Oszillationen der RHEED-Intensität abgezählt werden. Nach der Deposition wurde die Heterostruktur bei einem Druck von  $p(\text{O}_2) = 400 \text{ mbar}$  über mehrere Stunden abgekühlt. Die Deposition und die Terminierung wurden von C. Richter durchgeführt.

Für die rastersondenmikroskopischen Untersuchungen ist ein elektrischer Kontakt zur Grenzfläche nötig. Standardmäßig werden zur Kontaktierung der Grenzfläche die gewünschten Strukturen fotolithografisch auf der Probe erzeugt. Dies erfordert den Einsatz von Fotolack, der auf die gesamte Probenoberfläche aufgebracht wird. Diese zusätzliche Verunreinigung der Probenoberfläche ist für rastersondenmikroskopische

Untersuchungen unerwünscht. Deshalb wurde hier ein anderes Verfahren zur Kontaktierung der Proben eingesetzt.

Zuerst wurden die Proben mit leitfähigem Epoxidharz-Kleber auf dem zweigeteilten Probenträger befestigt (Abbildung 5.1). Der Epoxidharz-Kleber diente als Backgate

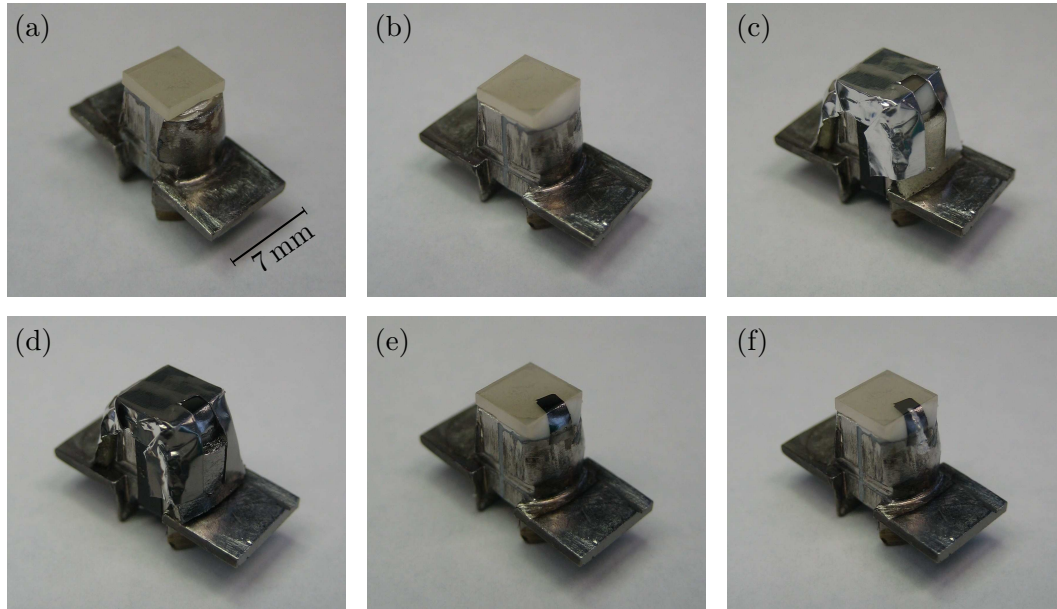


Abbildung 5.1.: Die verschiedenen Teilschritte zur Kontaktierung der Probe. Bei der auf den Probenträger aufgeklebten Probe (a) wird eine Kante der Probe mit nicht leitfähigem Kleber abgedeckt (b). Anschließend wird eine Maske aus Aluminium Folie angebracht (c). Nach dem Ionenätzen wird Titan aufgedampft (d) und die Maske entfernt (e). Zur Verbesserung des Kontakts wird eine dünne Spur leitfähigen Klebers zwischen Probenträger und aufgedampften Titan aufgebracht (f).

und war mit einer Hälfte des Probenträgers elektrisch verbunden. Die andere Hälfte des Probenträgers fungierte als Kontakt zur Grenzfläche. Auf dieser Seite wurde der überschüssige Silberkleber durch Feilen entfernt. Anschließend wurden die übrigen Kleberreste mit einem nicht leitfähigen Kleber abgedeckt, um einen Kurzschluss zum Backgate zu vermeiden. Nun wurde eine Maske aus Aluminium Folie mit Hilfe von doppelseitigem Klebeband am Probenträger befestigt. Die Maske wurde so angebracht, dass ein Rechteck auf der Probe nicht durch die Folie bedeckt war. Mittels Ar-Ionenätzen wurde an dieser Stelle der  $\text{LaAlO}_3$ -Film und Teile des  $\text{SrTiO}_3$ -Substrats entfernt. Das entstandene Loch wurde in einem Elektronenstrahlverdampfer mit Titan aufgefüllt. Das Titan wurde für 10 Minuten bei einem Strom von 200 mA unter einem Winkel von  $45^\circ$  aufgedampft. Der Winkel von  $45^\circ$  wurde gewählt, um an der freigelegten Flanke den Übergang zwischen  $\text{LaAlO}_3$  und  $\text{SrTiO}_3$  mit Titan zu bedecken.

Um auch bei tiefen Temperaturen einen guten Kontakt zwischen Probenträger und Grenzfläche zu gewährleisten, wurde nach dem Entfernen der Maske eine zusätzliche Kleberbrücke zwischen dem Titan Kontakt und dem Probenträger aufgebracht.

## 5.2. Präparation der Probenoberfläche

Die Proben wurden über die Load-Lock-Kammer in die Präparationskammer eingeschleust. Da die Proben zwischen der Herstellung und dem Einschleusen Luft ausgesetzt waren, musste ihre Oberfläche gereinigt werden. Dies geschah über eine Heizung der Proben durch eine Halogen-Lampe. Für das Heizen wurde ein Verfahren, das in Referenz [107] entwickelt wurde, verwendet. Die Halogenlampe wurde auf das untere Ende des Manipulators fokussiert. Die Proben wurden durch ihren Kontakt zum Manipulator über diesen geheizt. Die Leistung der Halogenlampe wurde so eingestellt, dass an der Probe eine Temperatur von  $\approx 170^\circ\text{C}$  erreicht wurde. Die Proben wurden für ca. eine Stunde geheizt. Um eine Dotierung des  $\text{SrTiO}_3$  mit Sauerstoff-Fehlstellen zu vermeiden, herrschte während des Heizvorgangs ein Sauerstoffhintergrunddruck von  $1 \cdot 10^{-2}$  mbar im Präparationssystem. Der Sauerstoff wurde über eine Druckdose (Reinheit 99,998 Vol.-% [108]) in das Präparationssystem geleitet. Nach dem Heizen wurden die Proben in die UHV-Kammer geschleust und auf 4,7 K abgekühlt.

Durch das Heizen wurden die Adsorbate auf der Probenoberfläche nicht vollständig entfernt. Nach dem Heizen war es aber leichter, eine saubere Stelle auf den Proben zu finden. Außerdem war auch insgesamt die gesamte Spitzen-Proben Konfiguration zeitlich stabiler als bei unbeheizten Proben.

## 5.3. Untersuchte Proben

In der vorliegenden Arbeit wurden die Proben sto1, mab006, T27 und T40 untersucht (Tabelle 5.1). Alle Proben wurden nach dem in Abbildung 5.1 dargestellten Verfahren kontaktiert. Die Proben mab006, T27 und T40 bestehen aus vier Einheitszellen  $\text{LaAlO}_3$  auf einem  $\text{TiO}_2$ -terminierten  $\text{SrTiO}_3$ -Substrat. Bei Probe sto1 handelt es sich

Probenname	Dicke des $\text{LaAlO}_3$ -Films	Heizparameter
sto1	kein $\text{LaAlO}_3$ -Film	nicht geheizt
mab006	vier Einheitszellen	nicht geheizt
T27	vier Einheitszellen	$T \approx 170^\circ\text{C}$ ; $p(\text{O}_2) = 1 \cdot 10^{-2}$ mbar
T40	vier Einheitszellen	$T \approx 170^\circ\text{C}$ ; $p(\text{O}_2) = 1 \cdot 10^{-2}$ mbar

Tabelle 5.1.: Übersicht der untersuchten Proben. Es sind der Name der Probe, die jeweilige Dicke des  $\text{LaAlO}_3$ -Films und die bei der Oberflächenpräparation verwendeten Heizparameter aufgeführt.



um ein reines  $\text{SrTiO}_3$ -Substrat. Die Proben sto1 und mab006 dienten zur Vorbereitung der Kapazitäts- und Kelvin-Sonden Messungen und werden deshalb im Folgenden nicht weiter diskutiert.

Die in den nächsten Kapiteln vorgestellten Ergebnisse wurden auf den beiden Proben T27 und T40 erzielt. Beide Proben wurden vor dem Einbau in die UHV-Kammer geheizt. Für eine vollständige Charakterisierung der Proben wurden nach Beendigung der Rastersondenmikroskopischen-Untersuchungen auch noch Transportmessungen durchgeführt. Für die Messung des Widerstands der leitfähigen Schicht waren weitere Kontakte zur Grenzfläche nötig. Um diese zu erzeugen, wurde die Probenoberfläche mit Ausnahme von rechteckigen Flächen am Rand der Probe mit Fotolack bedeckt. Dann wurde mittels Ionenätzen der  $\text{LaAlO}_3$ -Film und Teile des Substrats entfernt und die Löcher mit gesputtertem Titan gefüllt (Abbildung 5.2). Die Probe

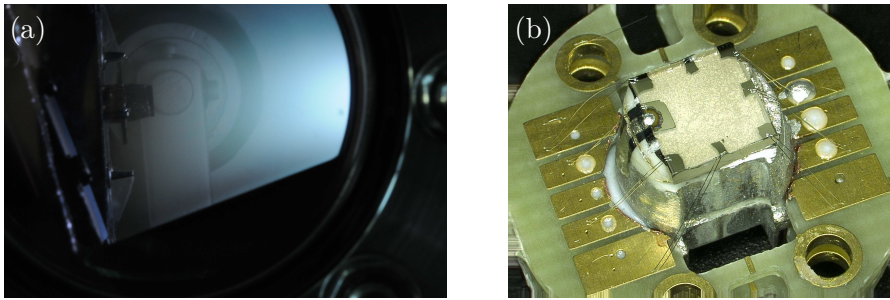


Abbildung 5.2.: Aufbringen von zusätzlichen Kontakten auf die Probe T27. (a) Sputtern von Titan Kontakten, (b) fertig gebondete Probe. Die Kantenlänge der Probe beträgt 5 mm.

T27 wurde dazu auf dem Probenträger belassen, die Probe T40 hingegen wurde zuvor durch Sägen vom Probenträger entfernt.

Der Widerstand  $R$  der Proben wurde in Abhängigkeit der Temperatur  $T$  in einer 4-Punkt Messung bestimmt. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.3 zu sehen. Beide Proben zeigen das für  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Proben typische Verhalten. Der Widerstand hängt für hohe Temperaturen annähernd quadratisch von der Temperatur ab.

Bei Probe T40 wurde außerdem die Ladungsträgerdichte gemessen. Die Messung erfolgte nach der van-der-Pauw Methode [109] mit angelegten Magnetfeldern von  $\pm 2$  T. Im Vergleich zur Messung des Widerstands wurden die Kontakte für  $I$ - und  $V$ - vertauscht (Abbildung 5.4(b)). Aus der Änderung des magnetfeldabhängigen Hall-Widerstands  $R_B$ , der der Steigung der  $V(I)$  Kennlinien entspricht (Abbildung 5.4(a)), kann die Ladungsträgerdichte bestimmt werden [109]:

$$n = \frac{\Delta B}{q \Delta R_B}, \quad (5.1)$$

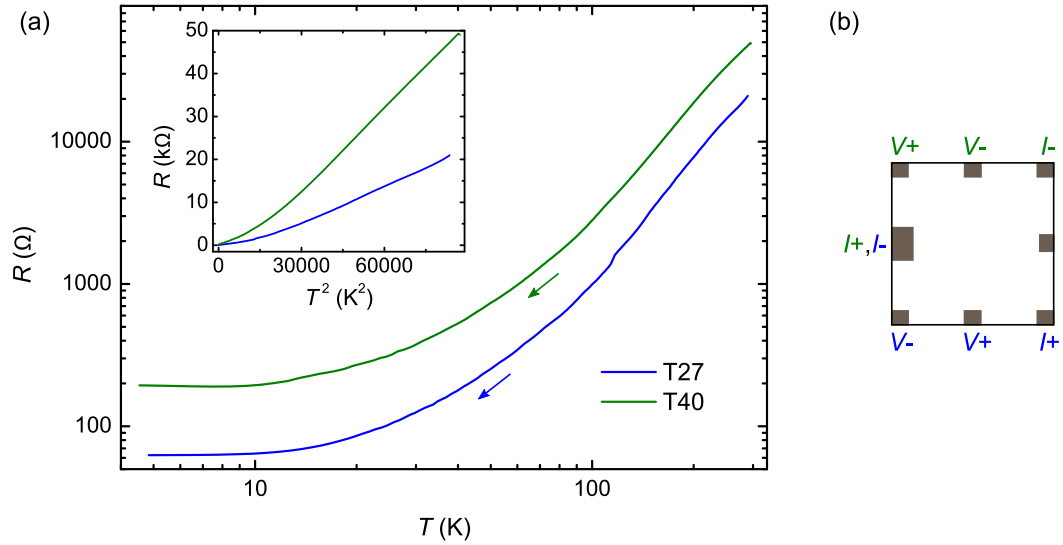


Abbildung 5.3.: Temperaturabhängiger Widerstand  $R(T)$  der Proben T27 und T40. (a) Der Widerstand wurde beim Abkühlen der Proben aufgezeichnet. (b) zeigt die jeweilige Anordnung der Spannungs- und Stromkontakte für die 4-Punkt Messung des Widerstands.

mit der Ladung  $q$  der Ladungsträger. Bei  $T = 4,2\text{ K}$  wurde eine Ladungsträgerdichte von  $1,7 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$  gemessen.

Bei den Messungen wurde festgestellt, dass es sich bei Probe T40 um eine inhomogene Probe handelt. Der Widerstand zwischen zwei Kontakten hing stark von der Position der Kontakte auf der Probe ab. Deshalb wurde versucht, nachträglich zwei Hallstege zu strukturieren. Die strukturierte Probe ist in Abbildung 5.5 zu sehen. Dazu wurden Niob Kontakte zur Grenzfläche mittels Fotolithografie erzeugt. (Die Fotolithografie wurde von C. Richter durchgeführt.) Anschließend wurden die Stege und die Kontakte mit Fotolack abgedeckt. Die Probe wurde nun im Focused Ion Beam (FIB200 [110]) auf einer Fläche von  $2 \times 2 \text{ mm}^2$  mit Gallium Ionen beschossen (Stromstärke 2700 pA bei 30 kV für ca. 10 s). Die Umgebung der Stege wurde mit dem Strahl abgefahren. Die nicht mit Fotolack bedeckten Teile der  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostruktur wurden durch den Beschuss mit den Gallium Ionen isolierend [105]. Die strukturierten Stege behielten ihre Leitfähigkeit.

An der strukturierten Probe wurden Hall-Messungen durchgeführt. Die Hallspannung wurde an Kontakten senkrecht zum Stromfluss gemessen. Beim Abkühlen der Probe unter 40 K traten Kontaktprobleme auf. Es war in den meisten Fällen nicht möglich einen Strom durch die Grenzfläche zu treiben. Nach der Bestrahlung mit Licht und direkt anschließendem Abkühlen war es möglich auch bei tiefen Temperaturen eine Messung durchzuführen. Es wurde eine Ladungsträgerdichte von  $4,9 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  bei

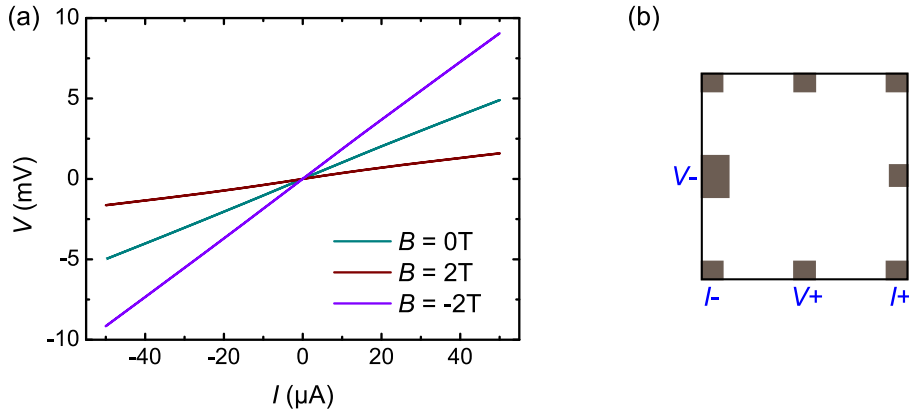


Abbildung 5.4.: Messung der Ladungsträgerdichte der Probe T40 nach der van-der-Pauw Methode. (a) Die drei  $V(I)$  Kennlinien wurden bei einer Temperatur von 4,2K und bei drei verschiedenen Magnetfeldern  $B$  aufgenommen. (b) zeigt die verwendete Anordnung der Spannungs- und Stromkontakte.

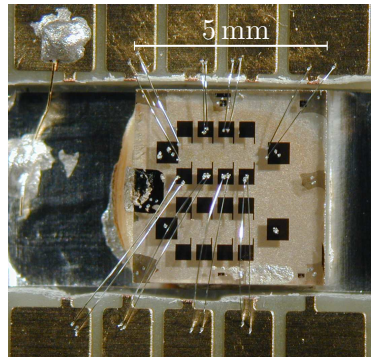


Abbildung 5.5.: Fotografie der Probe T40 mit zwei Hallstegen. Die Probe ist in ein Kontaktpad eingeklebt und der obere Hallsteg ist mit Bonds kontaktiert. Der große Kontakt auf der linken Seite ist der für die Kelvin-Sonden Messungen verwendete Titan-Kontakt zur Grenzfläche.

$T = 3,2\text{K}$  gemessen. Diese ist deutlich niedriger als die zuvor gemessene Ladungsträgerdichte und auch niedriger als typische Werte für  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Proben. Die geringe Ladungsträgerdichte könnte das Auftreten von Kontaktproblemen begünstigt haben.

Eine mögliche Ursache für das Verhalten der Probe könnte das relativ hohe Alter (8 Monate) der Probe sein. Außerdem wurde zur Strukturierung der Hallstege ein kaum erprobtes Verfahren verwendet, dessen Auswirkungen auf die Ladungsträgerdichte noch nicht untersucht wurden. Für die nachträgliche Strukturierung von

$\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Proben gibt es bisher kein etabliertes Verfahren. Ionenätzen kann hier nicht angewendet werden, da das  $\text{SrTiO}_3$ -Substrat durch den Ionen-Beschuss reduziert wird und somit leitfähig wird. Durch ein nachträgliches Ausheilen der Proben in einer Sauerstoff-Atmosphäre wird ein Teil der Sauerstoff-Fehlstellen wieder oxidiert. Es ist jedoch nicht gesichert, dass dies ausreicht um das  $\text{SrTiO}_3$  vollständig zu oxidieren.

Die Resultate der beiden Verfahren zur Bestimmung der Ladungsträgerdichte sind sehr unterschiedlich. Sie lassen es nicht zu, einen Wert für die Ladungsträgerdichte der Probe T40 anzugeben. Darüber hinaus muss eine nachträglich bestimmte Ladungsträgerdichte nicht unbedingt der Dichte während der Kelvin-Sonden Messungen entsprechen, da die Ladungsträgerdichte stark von der Gate-Vorgeschichte abhängt [111].

### 5.4. Spitzenpräparation

Durch die Adsorbatbelegung der Probenoberfläche sammelte auch die Spitze Adsorbate auf. Von Zeit zu Zeit war eine *in situ* Reinigung der Spitze nötig. Dies erfolgte durch Feldemission. Dabei wurden Spannungen bis zu  $\pm 400$  V an die Spitze angelegt. Der Abstand zur Probe wurde so eingestellt, dass Ströme in der Größenordnung von  $1 \mu\text{A}$  auftraten. Da diese Ströme den normalen Messaufbau zerstören würden, wurde die „Break-Out-Box LV Preparation“ verwendet (siehe Seite 68). Die Hochspannung wurde solange aufrecht erhalten, bis der Emissions-Strom schlagartig abfiel [39]. Die Feldemission führte zu einer lokalen Kontamination der Probenoberfläche. Dies machte in den meisten Fällen eine Verschiebung der Spitze notwendig.

Durch wiederholte Feldemissionen war es möglich, Spitzen zu erzeugen, die sich für eine topografische Abbildung der Probenoberfläche und zur Messung des Kontaktpotentials eigneten.

### 5.5. Topografie-Abbildungen

Für die Kontaktpotentialmessungen wurde eine saubere Stelle auf der Probe benötigt. Deshalb wurde zuerst die Topografie der Proben abgebildet. Abbildung 5.6 zeigt zwei rastersondenmikroskopische Aufnahmen der beiden Proben. Die Einheitszellen hohen Stufen, die durch den Fehlschnitt der  $\text{SrTiO}_3$ -Substrate entstehen, sind klar zu erkennen. Die Abbildung der Stufen in der richtigen Höhe war ein Kriterium für den Start der Kontaktpotentialmessungen. Für diese wurde eine saubere Stelle im Bild ausgewählt und der Spitzen-Proben-Abstand auf einen bestimmten Wert stabilisiert.

Die Topografie-Abbildungen erlaubten außerdem einen Rückschluss auf die Qualität der Spitze. Waren während der Aufzeichnungen viele Spitzenwechsel zu sehen, war

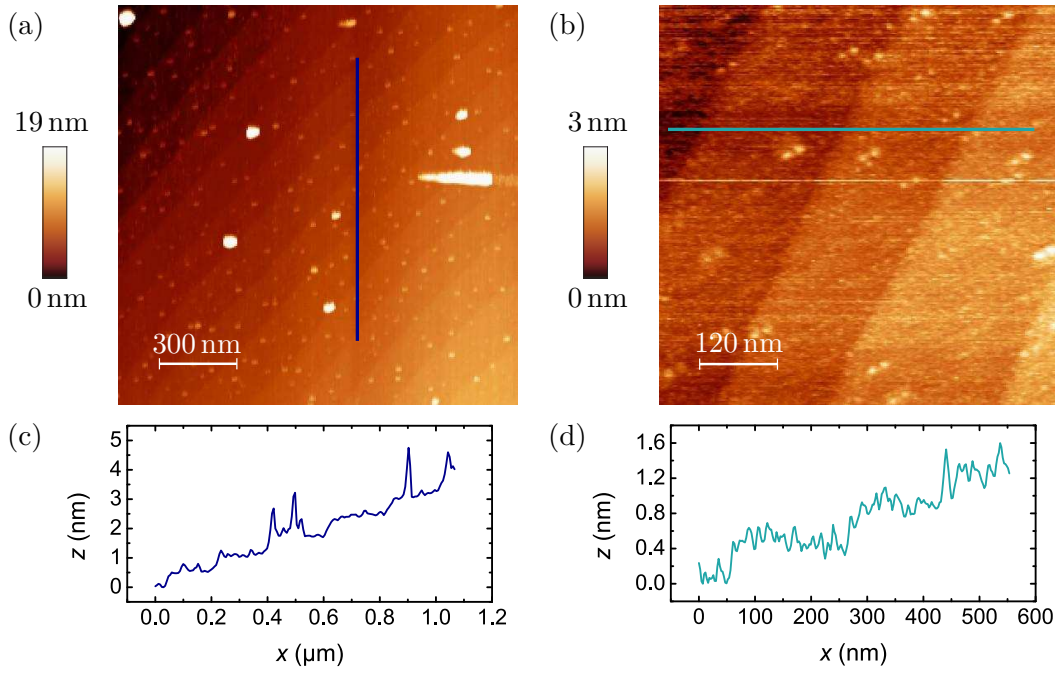


Abbildung 5.6.: Rastersondenmikroskopische Aufnahmen der Probenoberfläche. (a) AFM Bild der Probe T40 aufgezeichnet bei einer Frequenzverschiebung von  $-1,8\text{ Hz}$  und einer Aufzeichnungsrate von  $75\text{ nm s}^{-1}$ . (b) STM Bild der Probe T27 aufgenommen mit einem Sollwert des Tunnelstroms von  $10\text{ pA}$  bei einer Spannung von  $V_{ts} = 2\text{ V}$  und einer Rate von  $6\text{ nm s}^{-1}$ . (c) und (d) zeigen Profile entlang der Linien in (a) bzw. (b).

die Spitzenkonfiguration nicht stabil genug. Die Spitze konnte dann entweder durch weitere Bildaufzeichnungen stabilisiert werden oder eine Feldemission war nötig. In Abbildung 5.6(b) ist weiterhin zu erkennen, dass es sich bei dieser Spitze vermutlich um eine Doppelspitze handelte, da die Verunreinigungen auf der Probenoberfläche immer doppelt auftraten. Auch in diesem Fall war die Durchführung einer Feldemission nötig.

## 5.6. Messung des Kontaktpotentials

Wie auf Seite 19 beschrieben, kann das Kontaktpotential  $V_{\Delta\phi}$  durch die Aufnahme von  $\Delta f(V_{ts})$  Spektren bestimmt werden. Abbildung 5.7 zeigt ein solches Spektrum [30]. Wie nach Gleichung (2.18) zu erwarten, hängt die Frequenzverschiebung quadratisch von der angelegten Spannung ab (siehe Einschub von Abbildung 5.7). Das

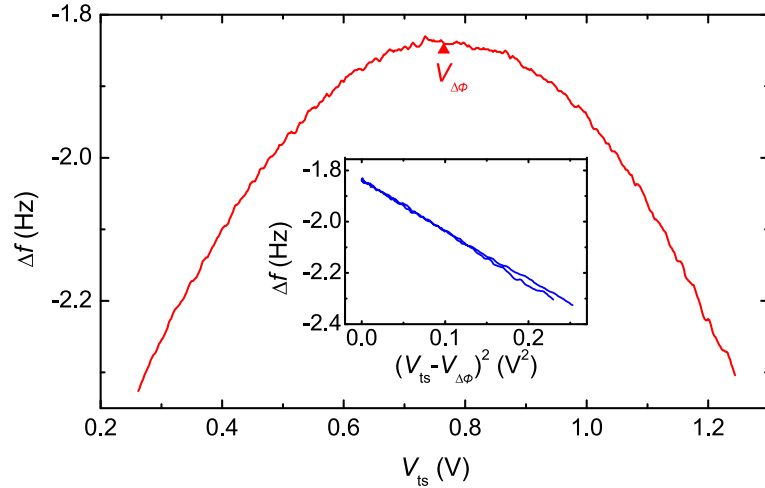


Abbildung 5.7.: Spannungsabhängiges Spektrum der Frequenzverschiebung  $\Delta f$ . Das Spektrum wurde bei einer Gate-Spannung von  $V_G = -40$  V, bei einer Temperatur von  $T = 4,7$  K und mit einer Geschwindigkeit von  $1 \text{ V min}^{-1}$  auf der Probe T40 aufgezeichnet. (Aus Referenz [30].)

Kontaktpotential kann am Extremum des Spektrums abgelesen werden. Das positive Vorzeichen des gemessenen Kontaktpotentials impliziert, dass die Austrittsarbeit der Probe größer war als die Austrittsarbeit der Spitze. Dieser Fall wurde auch in Abbildung 2.11 skizziert. Die Austrittsarbeit des nominellen Spitzenmaterials, Iridium, beträgt  $5,27 \text{ eV}$  [112]. Die tatsächliche Austrittsarbeit der Spitze hängt aber u. a. von der Adsorbatbelegung der Spitze ab.

Das Extremum der Frequenzverschiebungs-Spektren hing stark vom Spitzen-Proben-Abstand ab. Dies wird in Abbildung 5.8 ersichtlich. Die Abbildung zeigt drei Spektren, die bei drei unterschiedlichen Spitzen-Proben-Abständen  $z_1 > z_2 > z_3$  aufgezeichnet wurden. Die unterschiedlichen Abstände wurden durch eine Regelung auf unterschiedliche Sollwerte der Frequenzverschiebung bei  $V_{ts} = 0 \text{ V}$  erreicht. Die Abstände unterschieden sich um einige Nanometer. Diese Abstandsänderung führte zu einer Verschiebung des Extremums der Parabeln, und damit auch von  $V_{\Delta\phi}$ , in der Größenordnung von  $100 \text{ mV}$ . Dies machte deutlich, dass für eine Vergleichbarkeit des Kontaktpotentials der Spitzen-Proben-Abstand sehr genau festgelegt werden musste.

Aufgrund der Messung der langreichweitigen elektrostatischen Kraft ist mit der Messung des Kontaktpotentials eine Mittelung über die Spitze und Bereiche der Probe verbunden. Der Betrag der einzelnen Beiträge hängt dabei vom Spitzen-Proben-Abstand ab. Je geringer der Spitzen-Proben-Abstand ist, desto kleiner ist der Bereich über den gemittelt wird und desto mehr trägt der vordere Teil der Spitze bei. Dieser Effekt kann zu einer Abstandsabhängigkeit des Kontaktpotentials führen. Es sind aber weitere Ursachen für die Abhängigkeit des Kontaktpotentials vom Spitzen-Proben-Abstand wie z. B. eine Abstandsabhängigkeit des lokalen Vakuumniveaus möglich.

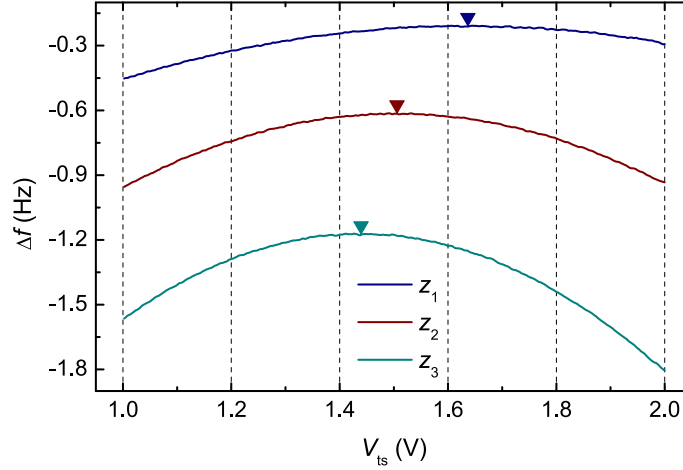


Abbildung 5.8.: Messung des Kontaktpotentials bei verschiedenen Spitzen-Proben-Abständen. Die  $\Delta f(V_{ts})$  Spektren wurden bei drei verschiedenen Abständen  $z_1 > z_2 > z_3$  zur Probe T27 bei  $T = 4,7$  K aufgezeichnet.

In der vorliegenden Arbeit sollte das Kontaktpotential für verschiedene Ladungsträgerdichten bestimmt werden. Die Ladungsträgerdichte kann durch das Anlegen einer Spannung zwischen der Grenzfläche und dem Backgate auf der Rückseite des SrTiO<sub>3</sub>-Substrats variiert werden. Da SrTiO<sub>3</sub> Elektrostriktion aufweist [68], bedeutete dies gleichzeitig eine Änderung der Dicke des Substrats. D. h. bei festgehaltener Spitze änderte sich der Spitzen-Proben-Abstand durch das Anlegen einer Gate-Spannung. Für jede Gate-Spannung war es also nötig den Spitzen-Proben-Abstand neu einzustellen. Für die Einstellung des Abstands kann man sich die Zusammensetzung der Kraft  $F_{\text{total}}$  zwischen Spitze und Probe zu Nutze machen:  $F_{\text{total}} = F_{\text{es}} + F_{\text{topo}}$ .  $F_{\text{topo}}$  bezeichnet eine „topografische“ Kraft, die sich aus Kräften wie der van-der-Waals Kraft oder der chemischen Bindungskraft zusammensetzt. Im Gegensatz zur elektrostatischen Kraft  $F_{\text{es}}$  ist  $F_{\text{topo}}$  unabhängig von der angelegten Spannung  $V_{ts}$  sowie von der aktuellen Ladungsträgerdichte. Für  $V_{ts} \approx V_{\Delta\phi}$  ist sie der dominierende Anteil in der Kraft und der damit verbundenen Frequenzverschiebung. Sucht man für jede Gate-Spannung das  $V_{ts}$ , das in etwa dem Kontaktpotential entspricht und regelt auf eine festgelegte Frequenzverschiebung, so wird der Spitzen-Proben-Abstand in ausreichender Genauigkeit konstant gehalten. Die Bedingung  $V_{ts} \approx V_{\Delta\phi}$  konnte erreicht werden, indem bei angestelltem Feedback  $V_{ts}$  so angepasst wurde, dass der Spitzen-Proben-Abstand minimal wurde. Für  $V_{ts} \neq V_{\Delta\phi}$  trat eine zusätzliche elektrostatische Kraft auf, die die Frequenzverschiebung vergrößerte, so dass ein größerer Abstand ausreichend war, um den Sollwert zu erreichen. Mit diesem Verfahren wurde der Spitzen-Proben-Abstand für jede Gate-Spannung neu eingestellt und für die Dauer von zehn Minuten stabilisiert.

Für die Aufnahme einer  $V_{\Delta\phi}(V_G)$  Messreihe wurde bei einer Gate-Spannung von 0 V gestartet. Nach der Stabilisierung des Spitzen-Proben-Abstands wurden zwei  $\Delta f(V_{ts})$



Spektren direkt nacheinander aufgezeichnet. Dann wurde der Betrag der Gate-Spannung erhöht und erneut Spektren aufgezeichnet. Es wurden nur negative Gate-Spannungen angelegt, da die Ladungsträgerdichte verringert werden sollte. Die Ergebnisse dreier Messreihen für die beiden Proben sind in den Abbildungen 5.9 bis 5.11 gezeigt. Die Messreihe aus Abbildung 5.9 wurde auf der Probe T40 aufgezeichnet [30],

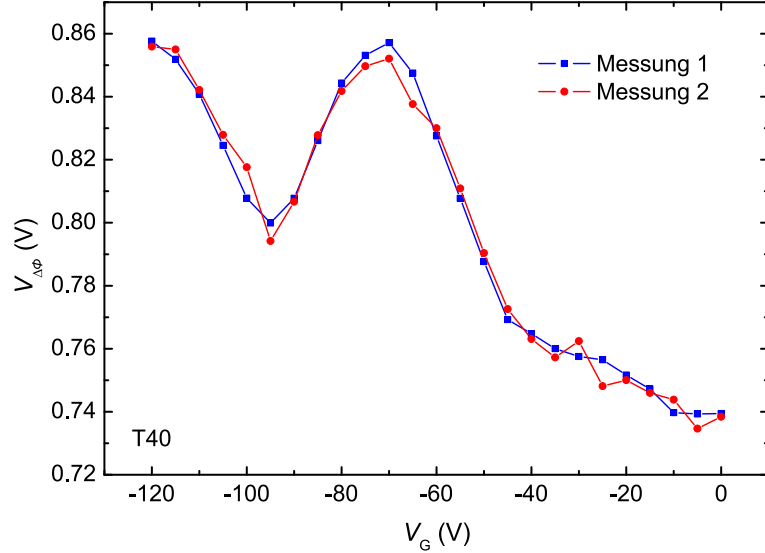


Abbildung 5.9.: Kontaktpotential  $V_{\Delta\phi}$  in Abhängigkeit der Gate-Spannung  $V_G$ . Messung 1 und Messung 2 bezeichnen zwei direkt nacheinander aufgezeichnete  $\Delta f(V_{ts})$  Spektren. Diese wurden auf der Probe T40 bei einer Temperatur von 4,7 K aufgezeichnet. (Daten aus Referenz [30].)

die anderen beiden Messreihen auf der Probe T27. Die beiden Datensätze der Probe T27 wurden an unterschiedlichen Plätzen der Probe gemessen. Zwischen den beiden Messreihen wurde die Probe auf ca. 70 K erwärmt und für kurze Zeit Licht ausgesetzt. Dieses Verfahren diente dazu, den Einfluss der Gate-Vorgeschichte zu minimieren und die Probe vor dem Start der nächsten Messung wieder annähernd in ihre elektronische Ausgangslage zurückzusetzen. Die Proben T40 und T27 wurden außerdem mit unterschiedlichen Spitzen untersucht. Bei allen drei  $V_{\Delta\phi}$  Messreihen konnte ein lokales Minimum identifiziert werden.

Für die Berechnung der elektronischen Kompressibilität wird die Ladungsträgerdichte der Grenzfläche benötigt. Um diese in Abhängigkeit von der Gate-Spannung zu bestimmen, habe ich parallel zum Kontaktpotential die Kapazität  $C$  zwischen Grenzfläche und Backgate gemessen [30]. Dazu wurde eine Wechselspannung mit einer Frequenz von  $f_{\text{mod}} = 77$  Hz und einer Amplitude von  $V_{\text{mod}} = 10$  mV<sub>rms</sub> an die Grenzfläche angelegt. Für vernachlässigbare Leckströme ist der resultierende Wechselstrom an der Grenzfläche proportional zur Kapazität. Dieser Wechselstrom wurde mit einem Lock-In Verstärker detektiert. Für eine Kalibrierung des Systems wurden vier verschiedene



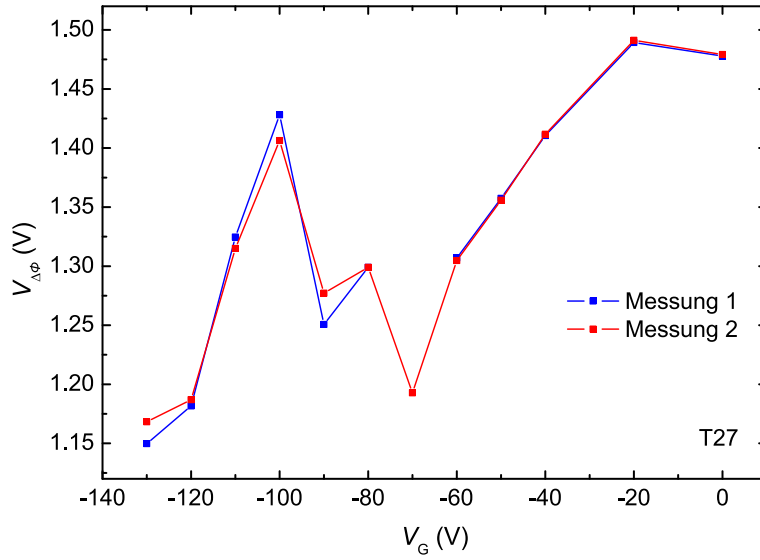


Abbildung 5.10.: Kontaktpotential  $V_{\Delta\phi}$  in Abhängigkeit der Gate-Spannung  $V_G$ . Messung 1 und Messung 2 bezeichnen zwei direkt nacheinander aufgezeichnete  $\Delta f(V_{ts})$  Spektren. Diese wurden auf der Probe T27 bei einer Temperatur von 4,7 K aufgezeichnet.

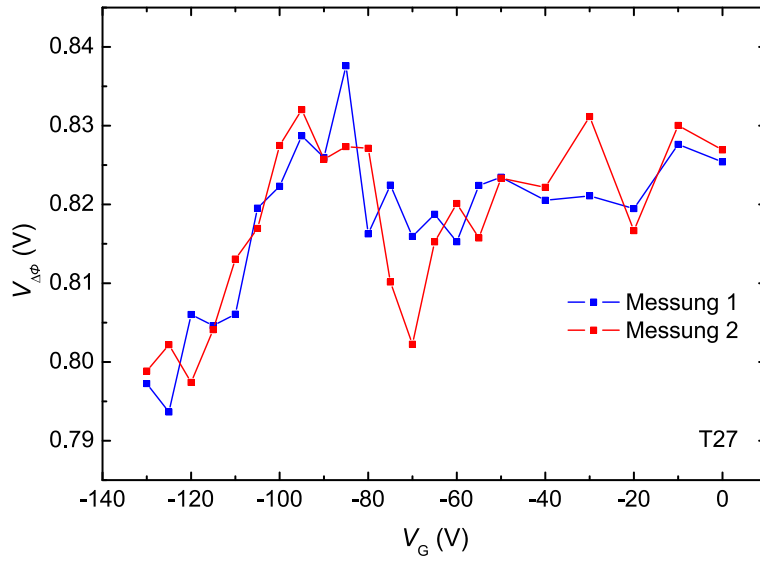


Abbildung 5.11.: Kontaktpotential  $V_{\Delta\phi}$  in Abhängigkeit der Gate-Spannung  $V_G$ . Messung 1 und Messung 2 bezeichnen zwei direkt nacheinander aufgezeichnete  $\Delta f(V_{ts})$  Spektren. Diese wurden auf der Probe T27 bei einer Temperatur von 4,7 K aufgezeichnet.

Kapazitäten an Stelle einer Probe in den Kupferzylinder bei Raumtemperatur eingebaut und der lineare Zusammenhang zwischen Strom und Kapazität bestimmt. Parallel zur Messreihe aus Abbildung 5.9 und 5.11 wurde für jede Gate-Spannung die Kapazität gemessen. Die Resultate sind in den Abbildungen 5.12 und 5.13 gezeigt.

Die Kapazität  $C = \epsilon\epsilon_0 S/d$  bei einer Gate-Spannung von 0 V ergibt mit der elektrischen Feldkonstanten  $\epsilon_0$ , der Querschnittsfläche  $S = 24 \text{ mm}^2$  und der Dicke  $d = 1 \text{ mm}$

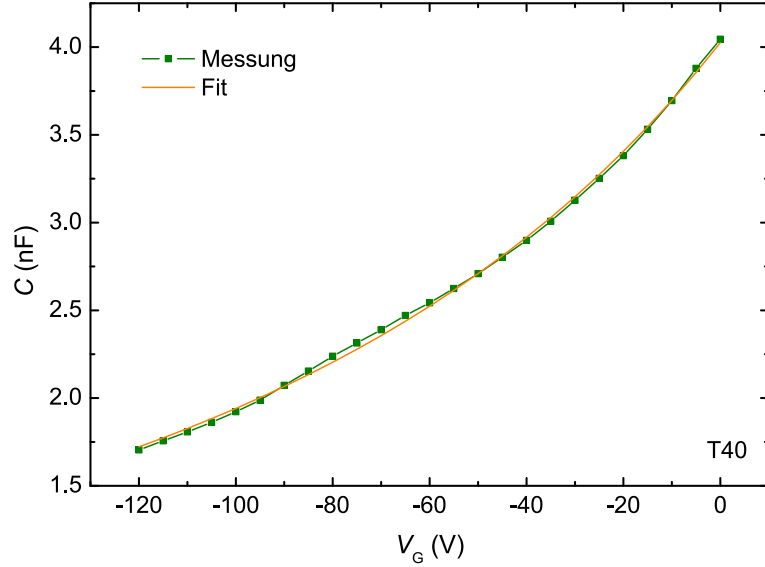


Abbildung 5.12.: Kapazität  $C$  zwischen Grenzfläche und Backgate als Funktion der Gate-Spannung. Die Daten wurden bei einer Temperatur von 4,7 K auf der Probe T40 aufgenommen. Die orange Kurve zeigt einen Fit mit der Funktion  $C_{\text{fit}}(V_G) = 1/(a \cdot V_G^2 + b \cdot V_G + c)$ .  $a$ ,  $b$  und  $c$  stellen dabei die Fitparameter dar. Für sie gilt:  $a = 5,1 \cdot 10^3 \text{ V}^{-2} \text{ F}^{-1}$ ,  $b = -2,2 \cdot 10^6 \text{ V}^{-1} \text{ F}^{-1}$ ,  $c = 0,25 \cdot 10^9 \text{ F}^{-1}$ .

eine Dielektrizitätszahl des  $\text{SrTiO}_3$  von  $\epsilon = 1,9 \cdot 10^4$  für Probe T40 und  $\epsilon = 1,8 \cdot 10^4$  für Probe T27. Dies entspricht in etwa dem Wert, der sich aus Gleichung (3.1) für  $T = 4,7 \text{ K}$  ergibt. Der starke Abfall der Kapazität wird vermutlich durch die Feldabhängigkeit der Dielektrizitätszahl von  $\text{SrTiO}_3$  erzeugt [75]. Die Kapazität kann durch folgende Formel angenähert werden:  $1/(a \cdot V_G^2 + b \cdot V_G + c)$ , mit den drei freien Parametern  $a$ ,  $b$  und  $c$  [113, 114]. Mit dieser Funktion wurde die Kapazität beider Proben gefittet. Die Kapazität der Probe T40 zeigt eine Erhöhung der Kapazität im Vergleich zur Fitfunktion im Bereich von  $-75 \text{ V}$  bis  $-85 \text{ V}$ . Dies entspricht genau dem Spannungsbereich in dem  $V_{\Delta\phi}$  bei steigender Gate-Spannung abfällt. Für Probe T27 ist die Kapazitätserhöhung im Bereich einer Gate-Spannung von  $-75 \text{ V}$  deutlich geringer. Diese Spannung entspricht ebenfalls dem Bereich kurz vor dem Minimum in  $V_{\Delta\phi}$ .

Weiterhin auffällig ist, dass die Kapazität über den gesamten Gate-Spannungsbereich

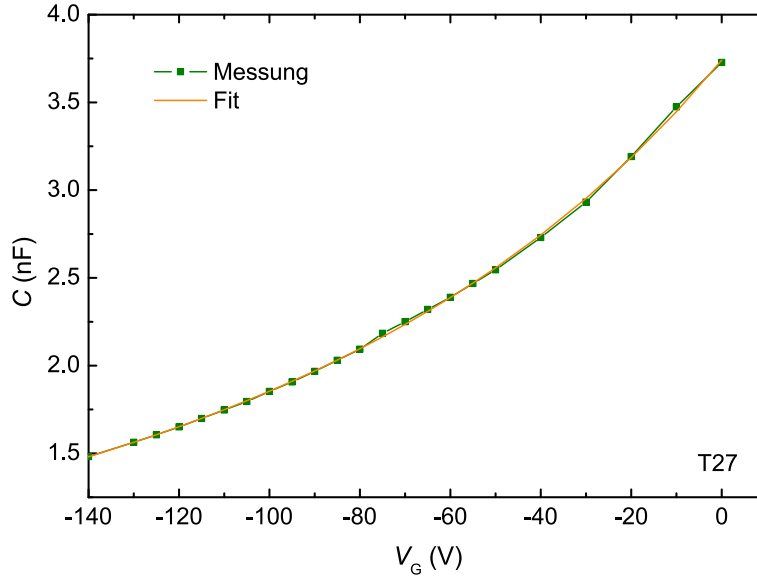


Abbildung 5.13.: Kapazität  $C$  zwischen Grenzfläche und Backgate als Funktion der Gate-Spannung. Die Daten wurden bei einer Temperatur von 4,7 K auf der Probe T27 aufgenommen. Die orange Kurve zeigt einen Fit mit der Funktion  $C_{\text{fit}}(V_G) = 1/(a \cdot V_G^2 + b \cdot V_G + c)$ .  $a$ ,  $b$  und  $c$  stellen dabei die Fitparameter dar. Für sie gilt:  $a = 4,9 \cdot 10^3 \text{ V}^{-2} \text{ F}^{-1}$ ,  $b = -2,2 \cdot 10^6 \text{ V}^{-1} \text{ F}^{-1}$ ,  $c = 0,27 \cdot 10^9 \text{ F}^{-1}$ .

keinen Sprung zeigt. Diesen würde man erwarten, sobald die Grenzfläche isolierend wird. Der Sprung in der Kapazität sollte aber deutlich kleiner ausfallen als für homogene Proben, da die  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Proben mit abnehmender Ladungsträgerdichte immer inhomogener werden. Es bilden sich leitfähige Inseln an der Grenzfläche aus, die durch Strompfade verbunden sind. Erst bei einem Zusammenbruch dieser Pfade wird die Grenzfläche isolierend. Eine mögliche Ursache für die Maskierung eines Sprungs in der Kapazität könnten Beiträge von Streukapazitäten wie durch den Titan-Kontakt sein. Dieser besitzt aber eine Kapazität in der Größenordnung von 0,4 nF bei  $V_G = 0 \text{ V}$ . Die Kapazität des Titan-Kontakts ist somit deutlich geringer als die hier gemessene Kapazität. Die Kapazität der Spitzen-Proben Anordnung spielt keine große Rolle, da die gemessene Kapazität unabhängig vom momentanen Spitzen-Proben-Abstand war.

## 5.7. Ergebnisse und Diskussion

In allen drei  $V_{\Delta\phi}(V_G)$  Messreihen tritt ein lokales Minimum auf. Für Probe T40 lag dieses Minimum bei einer Gate-Spannung von  $-95 \text{ V}$ . Bei Probe T27 trat dieses Minimum schon bei einer betragsmäßig kleineren Gate-Spannung von ca.  $-75 \text{ V}$  auf. Bei

$\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostrukturen ist die Verarmung der Ladungsträger durch das Anlegen einer Backgate-Spannung sehr stark probenabhängig. So unterscheidet sich z. B. die Gate-Spannung, bei der eine Probe isolierend wird, von Probe zu Probe. Sie kann sogar je nach Einkühlvorgang für ein und dieselbe Probe unterschiedlich sein. Diese unterschiedlichen Reaktionen der Proben auf elektrische Felder kann die unterschiedlichen Werte der Gate-Spannung am Minimum des Kontaktpotentials erklären.

Nur bei Probe T40 beginnt die Messreihe mit einem Anstieg des Kontaktpotentials. Dieser Anstieg könnte bei den Messreihen von Probe T27 im Bereich positiver Backgate-Spannungen auftreten, da hier die gesamte Kurve scheinbar zu größeren Spannungen verschoben ist. Dieser Spannungsbereich wurde in der vorliegenden Arbeit nicht untersucht, da das Hauptaugenmerk auf dem Bereich kleiner Ladungsträgerdichten lag. Der fehlende Anstieg und der vertikale Versatz der Messreihen könnten auch die Unterschiede im allgemeinen Trend der Messreihen erklären.

Die unterschiedlichen Absolutwerte des Kontaktpotentials für die drei Messreihen werden durch die Spitze verursacht. Die Austrittsarbeit der Spitze variiert je nach Adsorbatbelegung. Da zwischen den Messreihen die Probenoberfläche mehrfach abgerastert wurde, ist es sehr wahrscheinlich, dass sich die genaue Zusammensetzung der Spitze verändert hat. Dieser Umstand macht auch die Angabe von Absolutwerten der Austrittsarbeit der Probe für Kelvin-Sonden Messungen schwierig.

Dem Minimum im Kontaktpotential  $V_{\Delta\phi}$  ging jeweils ein Abfall von  $V_{\Delta\phi}$  mit steigender Gate-Spannung voraus. Dies bedeutet, dass die Differenz der Austrittsarbeiten mit sinkender Ladungsträgerdichte abnimmt. Da die Austrittsarbeit der Spitze während der Messreihe konstant war, muss die Änderung in  $\Delta\phi$  durch die Austrittsarbeit der Probe erzeugt werden. Da die Austrittsarbeit der Probe größer ist als die der Spitze, wird eine Abnahme von  $\Delta\phi$  durch eine Verringerung der Austrittsarbeit der Probe hervorgerufen. Diese wird durch einen Anstieg des chemischen Potentials der Probe im Vergleich zum Vakuumniveau erreicht. Das chemische Potential steigt also mit sinkender Ladungsträgerdichte an. Es tritt eine negative elektronische Kompressibilität auf [30].

Die Änderung der Ladungsträgerdichte durch das Anlegen einer Gate-Spannung  $\delta n$  kann durch Integration der Kapazität über die Gate-Spannung berechnet werden:

$$\delta n = \frac{1}{eS} \int_0^{V_G} C(V) dV. \quad (5.2)$$

$S$  bezeichnet hier die Fläche des Kondensators und beträgt ca.  $24 \text{ mm}^2$ . Für die Ladungsträgerdichte der Grenzfläche gilt dann:  $n = n_0 + \delta n$ , mit der ursprünglichen Ladungsträgerdichte  $n_0$  bei  $V_G = 0 \text{ V}$ . Die Hall-Messungen zur Bestimmung von  $n_0$  (siehe Kapitel 5.3) lassen es nicht zu, einen Zahlenwert für die Probe T40 anzugeben. Außerdem hängt die Ladungsträgerdichte stark von der Gate-Spannungs Vorgeschichte einer Probe ab [111]. Deshalb muss ein nachträglich bestimmtes  $n_0$  nicht unbedingt

der Ladungsträgerdichte bei den Kelvin-Sonden Messungen entsprechen. Für die Berechnung der Kompressibilität ist es nicht nötig, die absolute Ladungsträgerdichte zu kennen. Hierfür genügt die Änderung der Ladungsträgerdichte  $\delta n$ , die im Experiment bestimmt werden konnte.

$d\mu_s/dn$ , das Inverse der elektronischen Kompressibilität  $\kappa$ , kann daher aus den bestehenden Daten berechnet werden:  $d\mu_s/dn = d\mu_s/d(\delta n) = -d(eV_{\Delta\phi})/d(\delta n)$ . Das Resultat für die Probe T40 ist in Abbildung 5.14 zu sehen. In der Tat ist die Ablei-

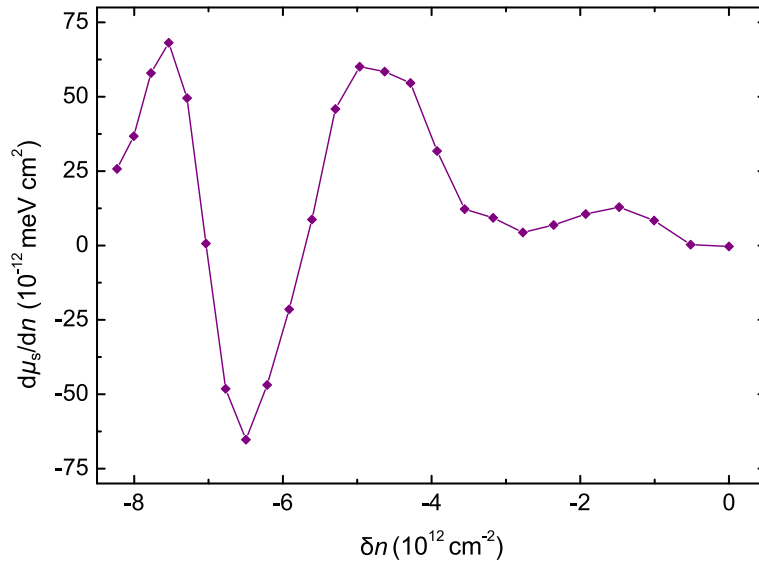


Abbildung 5.14.: Die Inverse der elektronischen Kompressibilität  $d\mu_s/dn$  als Funktion der Änderung der Ladungsträgerdichte  $\delta n$ . (Daten aus Referenz [30].)

tung im Bereich von  $\delta n = -6 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  negativ. Der Wert des Minimums beträgt  $\approx -70 \cdot 10^{-12} \text{ meV cm}^{-2}$ .

Abbildung 5.15 zeigt einen Vergleich der von mir gemessenen Daten mit den Daten aus Referenz [24]. Für den Vergleich wurden aus Referenz [24] die Daten, die mit der niedrigsten Frequenz gemessen wurden, ausgewählt. Der Betrag der drei Minima liegt im Bereich von  $-80 \cdot 10^{-12}$  bis  $-10 \cdot 10^{-12} \text{ meV cm}^{-2}$ . Der mit Kelvin-Sonden Kraftmikroskopie bestimmte Wert ist vergleichbar mit den zuvor gemessenen Werten. Es lässt sich keine systematische Abhängigkeit von der Dicke des  $\text{LaAlO}_3$ -Films erkennen.

Mit Hilfe der Kelvin-Sonden Messungen konnte gezeigt werden, dass die Grenzfläche eine negative elektronische Kompressibilität besitzt, wenn die Ladungsträgerdichte reduziert wird [30]. Dieses Resultat ist konsistent mit den Messungen von Lu Li *et al.* [24]. Die von mir verwendete Kelvin-Sonden Mikroskopie ist eine zu den bisher durchgeführten Kapazitäts- und Feld-Penetrations-Messungen unabhängige Methode.

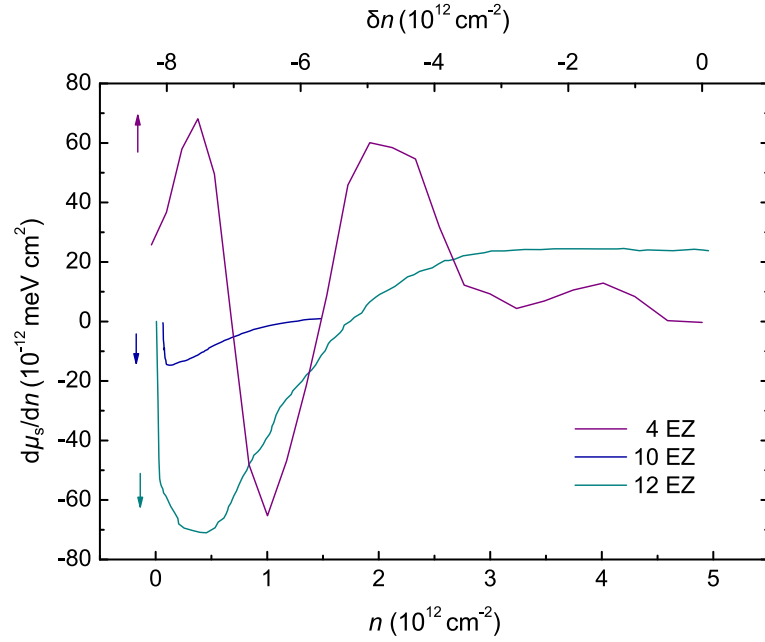


Abbildung 5.15.: Die Inverse der elektronischen Kompressibilität  $d\mu_s/dn$  als Funktion der Ladungsträgerdichte  $n$  bzw. der Änderung der Ladungsträgerdichte  $\delta n$ . Die Daten wurden auf Proben mit vier, zehn und zwölf Einheitszellen (EZ)  $\text{LaAlO}_3$  aufgezeichnet. Die Pfeile zeigen auf die jeweils zugehörige  $x$ -Achse. (Daten aus Referenz [24] und Referenz [30].)

Die Kapazitätsmessungen wurden von Lu Li *et al.* an Heterostrukturen mit  $\text{LaAlO}_3$ -Filmen von zehn und zwölf Einheitszellen durchgeführt [24]. Hierbei war es nicht möglich, die Filmdicke weiter zu reduzieren, da auftretende Tunnel- und Leckströme zwischen Topgate und Grenzfläche die korrekte Kapazitätsmessung erschweren. Es wird allerdings erwartet, dass eine weitere Reduzierung der Filmdicke die relative Kapazitätserhöhung vergrößert [24]. Durch die Kelvin-Sonden Kraftmikroskopie war es möglich, eine negative Kompressibilität an Proben mit sehr dünnen  $\text{LaAlO}_3$ -Filmen von vier Einheitszellen zu messen. Dies ist die minimale Dicke, die für eine leitfähige Grenzschicht nötig ist [13].

Bei den Kelvin-Sonden Messungen konnte außerdem auf die Verwendung eines Topgates verzichtet werden, da die Ladungsträgerdichte ausschließlich durch ein Backgate reduziert wurde. Wie auf Seite 23 diskutiert, hat ein Topgate einen großen Einfluss auf die Grenzfläche. Durch die durchgeführten Messungen konnte gezeigt werden, dass die negative Kompressibilität der Grenzfläche nicht vom Topgate induziert wird. Die negative Kompressibilität ist also eine intrinsische Eigenschaft der  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Grenzfläche.

## 6. Zusammenfassung

Oxidische Materialien besitzen bereits als reine Materialien interessante Eigenschaften. Doch durch die Kombination zweier Oxide können Grenzflächen mit neuartigen Phasen entstehen. Eines der bekanntesten Beispiele für so eine oxidische Grenzfläche ist die  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostruktur. Wird  $\text{LaAlO}_3$  epitaktisch auf ein  $\text{TiO}_2$ -terminiertes  $\text{SrTiO}_3$ -Substrat gewachsen, so entsteht an der Grenzfläche eine zweidimensionale Elektronenflüssigkeit. Die in dieser Arbeit durchgeführten Messungen wurden durch die Resultate der Kapazitätsmessungen von Lu Li *et al.* [24] inspiriert. In  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostrukturen mit zehn oder zwölf Einheitszellen  $\text{LaAlO}_3$  trat eine deutliche Erhöhung der Kapazität zwischen Grenzfläche und einem Topgate auf, als die Ladungsträgerdichte durch Gate-Felder reduziert wurde. Diese Erhöhung wurde durch eine negative elektronische Kompressibilität des Grenzflächen-Elektronensystems erzeugt. Durch die Verwendung eines alternativen Ansatzes zur Messung der elektronischen Kompressibilität, der Kelvin-Sonden Kraftmikroskopie, war es in dieser Arbeit möglich, Messungen an Proben mit nur vier Einheitszellen  $\text{LaAlO}_3$  durchzuführen.

In der Kelvin-Sonden Kraftmikroskopie wird das Kontaktpotential  $V_{\Delta\phi} = \frac{\Delta\phi}{e}$  durch die Messung von Frequenzverschiebungs-Spektren  $\Delta f(V_{\text{ts}})$  bestimmt. Diese Spektren zeigen eine quadratische Abhängigkeit von der Spannung. Das Extremum der Parabel entspricht dem Kontaktpotential. Durch Änderungen in  $V_{\Delta\phi}$  kann man auf Änderungen im elektrochemischen Potential der Probe zurückschließen.

Die Proben mit vier Einheitszellen  $\text{LaAlO}_3$  wurden von C. Richter nach dem am Lehrstuhl etablierten Verfahren hergestellt. Die Kontaktierung der Proben wurde nach dem in Referenz [107] vorgestellten Verfahren durchgeführt. Nachdem eine saubere Stelle auf der Probe gefunden wurde, konnten Frequenzverschiebungs-Spektren aufgezeichnet werden. Diese  $\Delta f(V_{\text{ts}})$  Spektren zeigten einen parabelförmigen Verlauf und das Kontaktpotential  $V_{\Delta\phi}$  konnte aus den Spektren bestimmt werden. Um das Kontaktpotential in Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte zu bestimmen, wurden  $\Delta f(V_{\text{ts}})$  Spektren für verschiedene Gate-Spannungen aufgezeichnet. Die Änderung der Ladungsträgerdichte konnte aus der Gate-Spannung durch ein Integral über die zwischen Grenzfläche und Backgate gemessene Kapazität berechnet werden. So war es möglich, die Inverse der elektronischen Kompressibilität  $d\mu_s/dn$  zu bestimmen.

Die elektronische Kompressibilität wird bei  $\delta n = -5,5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  negativ. Es war somit möglich zu zeigen, dass die negative elektronische Kompressibilität auch bei Heterostrukturen mit einem  $\text{LaAlO}_3$ -Film von nur vier Einheitszellen auftritt. Das

Minimum der Inversen liegt in der gleichen Größenordnung wie von Lu Li *et al.* gemessen. Die Größe der Kompressibilität ist unabhängig von der Dicke des  $\text{LaAlO}_3$ -Films. Außerdem wurde gezeigt, dass die negative Kompressibilität eine intrinsische Eigenschaft der  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Grenzfläche ist und nicht von Materialien auf der Oberfläche des  $\text{LaAlO}_3$ -Films erzeugt wird.



## 7. Ausblick

Bei der Miniaturisierung von elektronischen Bauelementen spielt die Optimierung der Kapazität der Bauteile eine wichtige Rolle [115–118]. Dabei wird hauptsächlich der Ansatz der Optimierung der dielektrischen Schicht verfolgt. In Referenz [119] wurde hingegen vorgeschlagen, die Kapazität durch die richtige Wahl der Elektroden zu erhöhen. Wie in Referenz [24] gezeigt, ist die  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Grenzfläche ein Beispiel für so eine Elektrode. Es wurde eine Kapazitätserhöhung von mehr als 40 % über der geometrischen Kapazität gemessen. Die Erhöhung trat bei Proben mit zehn und zwölf Einheitszellen  $\text{LaAlO}_3$  auf. Es wird erwartet, dass die relative Erhöhung für Proben mit vier Einheitszellen  $\text{LaAlO}_3$  noch größer wird, da diese eine größere geometrische Kapazität besitzen [24]. Bis jetzt war es aber aufgrund von Tunnel- und Leckströmen durch so dünne  $\text{LaAlO}_3$ -Filme nicht möglich, derartige Bauelemente zu realisieren. Nachdem in dieser Arbeit gezeigt werden konnte, dass Heterostrukturen mit vier Einheitszellen  $\text{LaAlO}_3$  ebenfalls eine negative Kompressibilität besitzen, sollte die Realisierung solcher Bauelemente vorangetrieben werden. Eine Möglichkeit wäre es, zwischen Topgate-Elektrode und Heterostruktur ein zusätzliches Dielektrikum zur Reduktion der Leckströme aufzubringen (Abbildung 7.1).

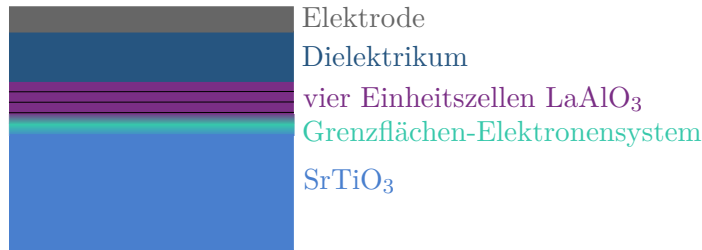


Abbildung 7.1.:  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostruktur mit einem zusätzlichen Dielektrikum unter der Gate-Elektrode.

Für die geometrische Kapazität  $C_{\text{geo}}$  des Gesamtsystems gilt:

$$C_{\text{geo}} = \left( \frac{1}{C_{\text{lao}}} + \frac{1}{C_{\text{dielek}}} \right)^{-1} = \epsilon_0 S \left( \frac{d_{\text{lao}}}{\epsilon_{\text{lao}}} + \frac{d_{\text{dielek}}}{\epsilon_{\text{dielek}}} \right)^{-1}.$$

$d_{\text{lao}}$  und  $d_{\text{dielek}}$  bezeichnen die Dicke des  $\text{LaAlO}_3$ -Films bzw. des Dielektrikums und  $\epsilon_{\text{lao}}$ ,  $\epsilon_{\text{dielek}}$  sind die Dielektrizitätszahlen der beiden Materialien.  $S$  steht für die Fläche

des Kondensators und  $\epsilon_0$  ist die elektrische Feldkonstante. Wählt man für das Dielektrikum ein Material, dessen Dielektrizitätszahl deutlich größer ist als die von  $\text{LaAlO}_3$ , z. B.  $\text{BaTiO}_3$  [120] oder  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  [121], so kann der Beitrag des Dielektrikums zur geometrischen Kapazität vernachlässigt werden. Die Erhöhung der Kapazität dieser Anordnung sollte ein Vielfaches der geometrischen Kapazität betragen.

# Anhang

## A. Tunneltheorie von Bardeen

Die Tunneltheorie von Bardeen [41] ist eine Theorie, die das Tunneln zwischen zwei Materialien A und B beschreibt. Sie kann für die Berechnung des Tunnelstroms in einem STM verwendet werden. Die Vorgehensweise von Bardeen wird zuerst im Fall einer eindimensionalen Tunnelbarriere nachvollzogen. Die Theorie startet ausgehend von zwei unabhängigen Teilsystemen A und B (siehe Abbildung A.1). Im Material A

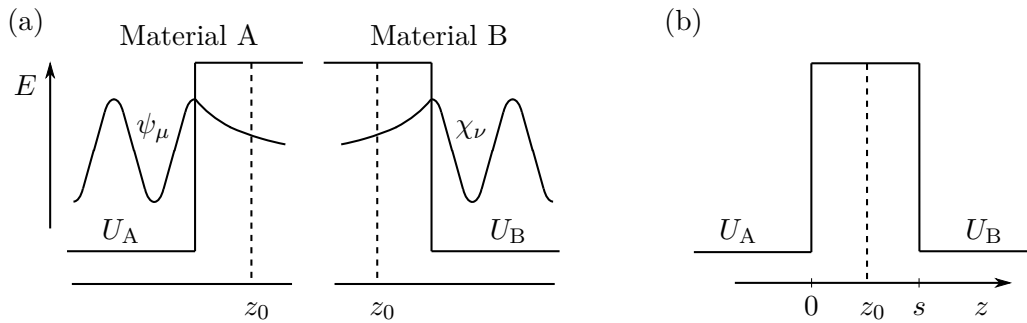


Abbildung A.1.: Skizze zur Veranschaulichung der Grundidee der Bardeen Tunneltheorie für eine eindimensionale Tunnelbarriere. Teilbild (a) zeigt zwei getrennte Materialien A und B mit ihren Potentialen  $U_A$  und  $U_B$ . Die Wellenfunktionen im Bereich A werden mit  $\psi_\mu$  bezeichnet, die im Bereich B mit  $\chi_\mu$ . In Teilbild (b) sind die beiden Elektroden zusammengebracht.  $z_0$  bezeichnet den  $z$ -Wert an dem ein Übergang zwischen den beiden Materialien stattfindet.

liegt das Potential  $U_A$  vor. Die Wellenfunktionen  $\psi_\mu$  des Materials A lösen die folgende Schrödingergleichung:

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + U_A \right) \psi_\mu = E_\mu \psi_\mu, \quad (\text{A.1})$$

mit den Energieeigenwerten  $E_\mu$ . Die Wellenfunktionen  $\chi_\nu$  des Materials B müssen ebenfalls die Schrödingergleichung lösen:

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + U_B\right) \chi_\nu = E_\nu \chi_\nu. \quad (\text{A.2})$$

$U_B$  ist hier das Potential von Material B. Die beiden Potentiale sind außerhalb des jeweiligen Materials null. Es gilt:  $U_A U_B = 0$  im gesamten Bereich. Die beiden Sätze an Wellenfunktionen fallen im Bereich zwischen den beiden Materialien exponentiell ab und es wird angenommen, dass die Beiden orthogonal zueinander sind.

Für die Gesamtwellenfunktion  $\Psi$  des kombinierten Systems muss die zeitabhängige Schrödingergleichung gelten:

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = \left(-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + U_A + U_B\right) \Psi. \quad (\text{A.3})$$

Ein Elektron, das sich zur Zeit  $t = 0$  im Zustand  $\psi_\mu$  befindet, kann in einen Zustand des Materials B tunneln. Die zugehörige Wellenfunktion  $\Psi$  kann durch folgenden Ansatz beschrieben werden:

$$\Psi = \psi_\mu \exp(-iE_\mu t/\hbar) + \sum_{\nu=1}^{\infty} c_\nu(t) \chi_\nu \exp(-iE_\nu t/\hbar). \quad (\text{A.4})$$

Die Koeffizienten  $c_\nu(t)$  sind durch Gleichung (A.3) festgelegt. Außerdem muss  $c_\nu(0) = 0$  gelten. In der Näherung orthogonaler Wellenfunktionen  $\psi_\mu$  und  $\chi_\nu$  und unter Vernachlässigung Terme zweiter Ordnung gilt für sie die Differentialgleichung [39]:

$$i\hbar \frac{dc_\nu(t)}{dt} = \int_{z>z_0} \psi_\mu U_B \chi_\nu^* d^3\mathbf{r} \exp(-i(E_\mu - E_\nu)t/\hbar).$$

Das Integral erstreckt sich nur über den rechten Halbraum, da  $U_B$  für  $z < z_0$  verschwindet. Nun kann das Tunnelmatrixelement  $M_{\mu\nu}$  definiert werden:

$$M_{\mu\nu} = \int_{z>z_0} \psi_\mu U_B \chi_\nu^* d^3\mathbf{r}. \quad (\text{A.5})$$

Für die Koeffizienten der Wellenfunktion erhält man nach einer Integration der Differentialgleichung:

$$c_\nu(t) = M_{\mu\nu} \frac{\exp(-i(E_\mu - E_\nu)t/\hbar) - 1}{E_\mu - E_\nu}.$$

Setzt man die Schrödingergleichung im System B (Gleichung (A.2)) in die Definition des Tunnelmatrixelements ein, so erhält man:

$$M_{\mu\nu} = \int_{z>z_0} \psi_\mu \left(E_\nu + \frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial z^2}\right) \chi_\nu^* d^3\mathbf{r}.$$

Unter Berücksichtigung der Bedingung  $E_\mu = E_\nu$  für elastisches Tunneln kann diese Gleichung umgeformt werden:

$$M_{\mu\nu} = \int_{z>z_0} \left( \chi_\nu^* E_\mu \psi_\mu + \psi_\mu \frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial z^2} \chi_\nu^* \right) d^3\mathbf{r}.$$

Ein Einsetzen der Schrödingergleichung für Material A (Gleichung (A.1)) führt zu einer symmetrischeren Form der Gleichung. Dabei ist zu berücksichtigen, dass  $U_A$  für  $z > z_0$  verschwindet.

$$M_{\mu\nu} = -\frac{\hbar^2}{2m} \int_{z>z_0} \left( \chi_\nu^* \frac{\partial^2 \psi_\mu}{\partial z^2} - \psi_\mu \frac{\partial^2 \chi_\nu^*}{\partial z^2} \right) d^3\mathbf{r}$$

Die Betrachtung für eine dreidimensionale Tunnelbarriere, kann analog zu obiger Ausführung durchgeführt werden. Der dreidimensionale Raum wird dabei in zwei Halbräume  $\Omega_A$  und  $\Omega_B$  der Materialien A und B mit der Trennungsfläche  $\Sigma$  unterteilt. Man erhält das Resultat [39]:

$$M_{\mu\nu} = -\frac{\hbar^2}{2m} \int_{\Omega_B} \left( \chi_\nu^* \nabla^2 \psi_\mu - \psi_\mu \nabla^2 \chi_\nu^* \right) d^3\mathbf{r}.$$

Das Volumenintegral kann mit der Verwendung der Greenschen Formel [122] in ein Oberflächenintegral umgewandelt werden.

$$M_{\mu\nu} = \frac{\hbar^2}{2m} \int_{\Sigma} (\psi_\mu \nabla \chi_\nu^* - \chi_\nu^* \nabla \psi_\mu) d\mathbf{S}. \quad (\text{A.6})$$

$d\mathbf{S}$  bezeichnet einen Normalenvektor auf die Trennungsfläche, der in den Halbraum  $\Omega_B$  zeigt.

Eine Summation über alle möglichen Zustände liefert den Tunnelstrom  $I_t$ :

$$I_t = \frac{4\pi e}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} [f(\mu_A - eV + \epsilon) - f(\mu_B + \epsilon)] \rho_A(\mu_A - eV + \epsilon) \rho_B(\mu_B + \epsilon) |M(\epsilon)|^2 d\epsilon. \quad (\text{A.7})$$

Mit der Fermi-Dirac-Verteilungsfunktion  $f(E) = (1 + \exp((E - \mu)/k_B T))^{-1}$ , den elektrochemischen Potentialen  $\mu_A$  und  $\mu_B$ , der Boltzmann-Konstanten  $k_B$ , der Temperatur  $T$  und den Zustandsdichten von Material A  $\rho_A$  und B  $\rho_B$ .

## B. Schaltpläne



Abbildung B.1.: Fotografie eines *in situ*-Vorverstärkers zur Auslenkungsdetektion der Quarz-Stimmgabel im Rastersondenmikroskop.

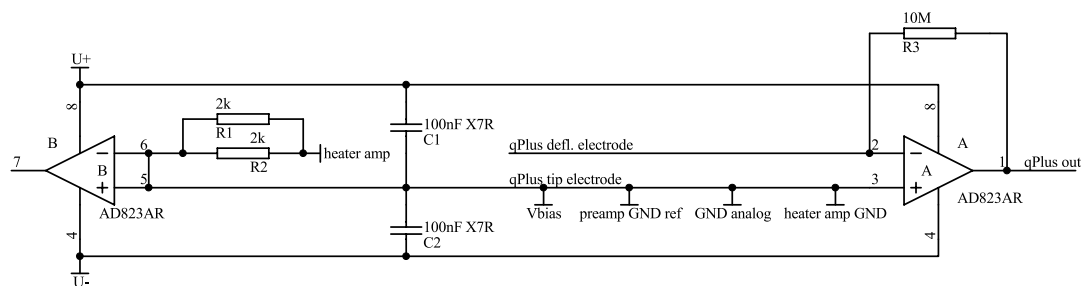


Abbildung B.2.: Schaltplan des *in situ*-Vorverstärkers für die Auslenkungsdetektion der Quarz-Stimmgabel. (Schaltplan erstellt in Anlehnung an [87].)



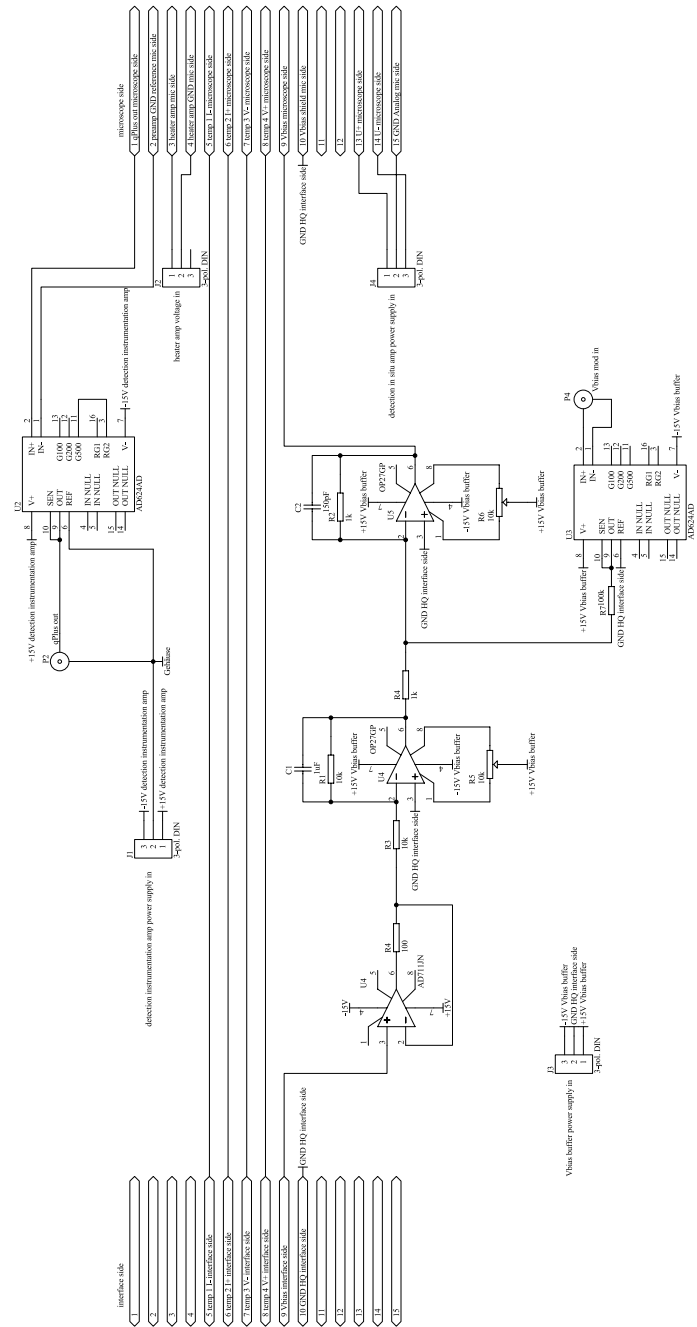


Abbildung B.4.: Schaltplan der „Break-Out-Box LV Measurement“. Die 100 nF Überbrückungskondensatoren für die Versorgungsspannungen sind nicht eingezeichnet. (Schaltplan erstellt von M. Breitschaft.)



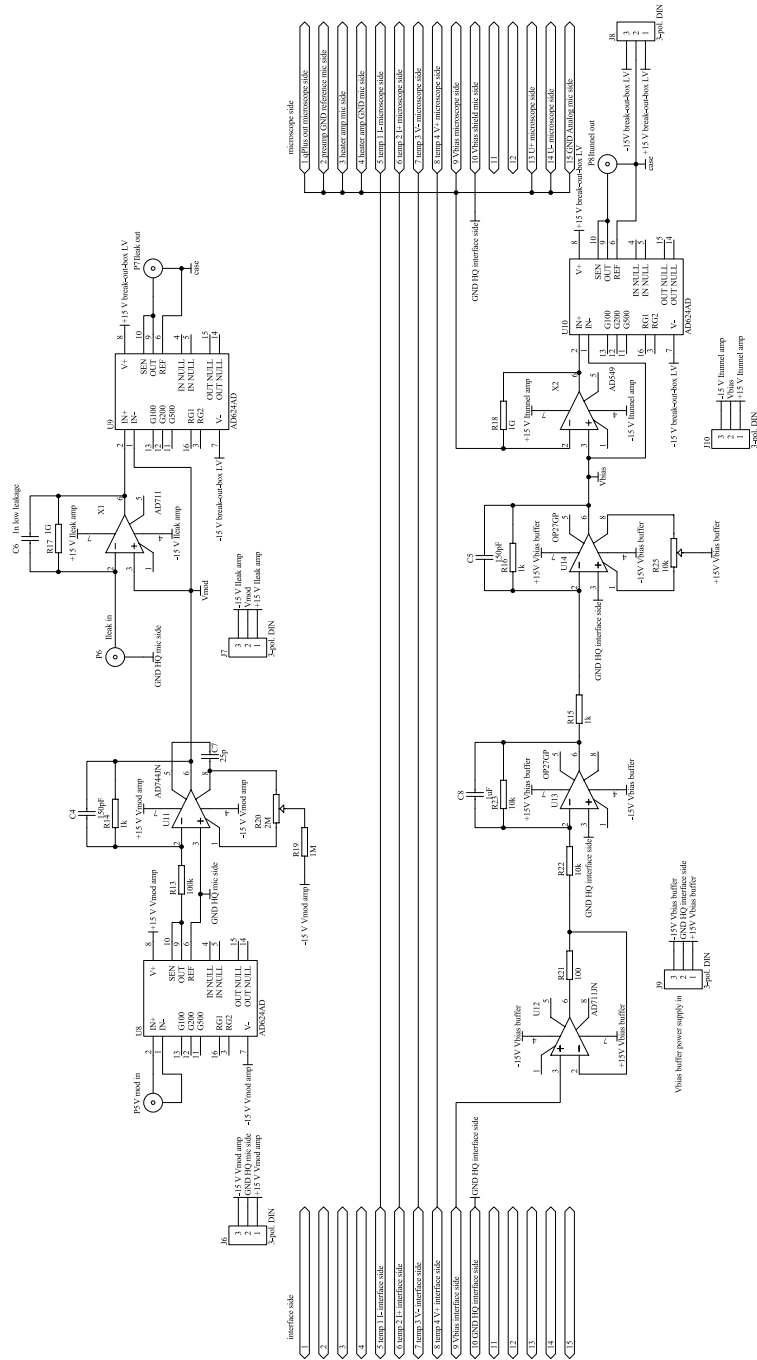


Abbildung B.5.: Schaltplan der Box, bei der der Strom über die Spitze gemessen wird. Die 100 nF Überbrückungskondensatoren für die Versorgungsspannungen sind nicht eingezeichnet. (Schaltplan erstellt von M. Breitschaft.)

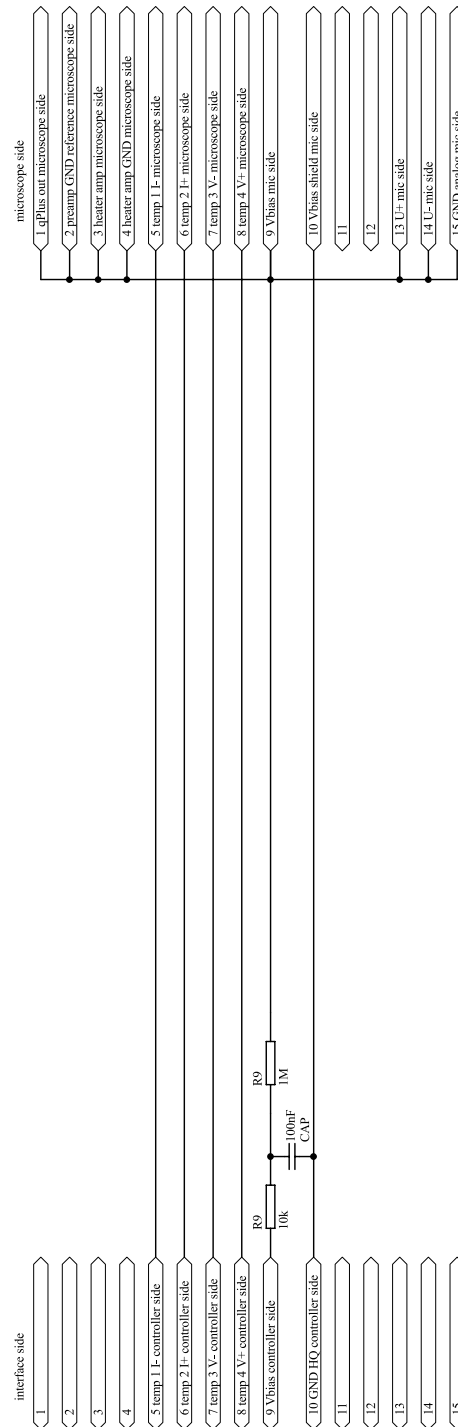


Abbildung B.6.: Schaltplan der „Break-Out-Box LV Preparation“, diese Box wird bei Feldemissionen anstelle der „Break-Out-Box LV Measurement“ verwendet. (Schaltplan erstellt von M. Breitschaft.)

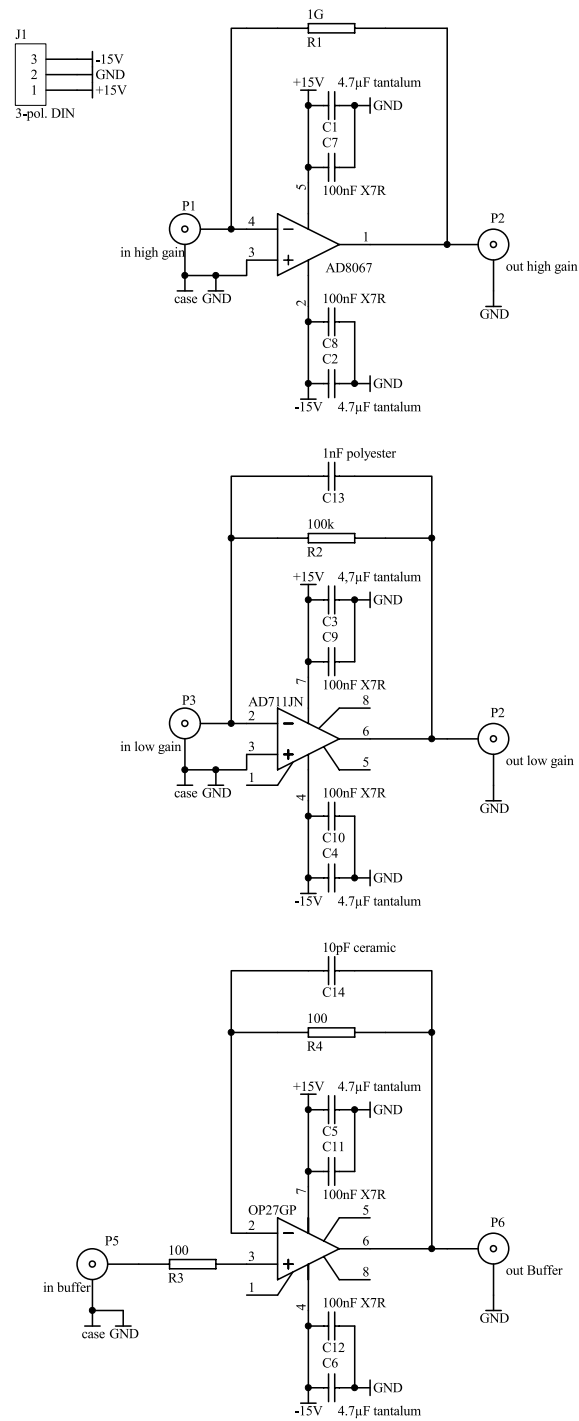


Abbildung B.7.: Schaltplan des Eigenbau-Transimpedanzverstärkers zur Tunnelstrom-Detektion. (Schaltplan erstellt in Anlehnung an [87].)

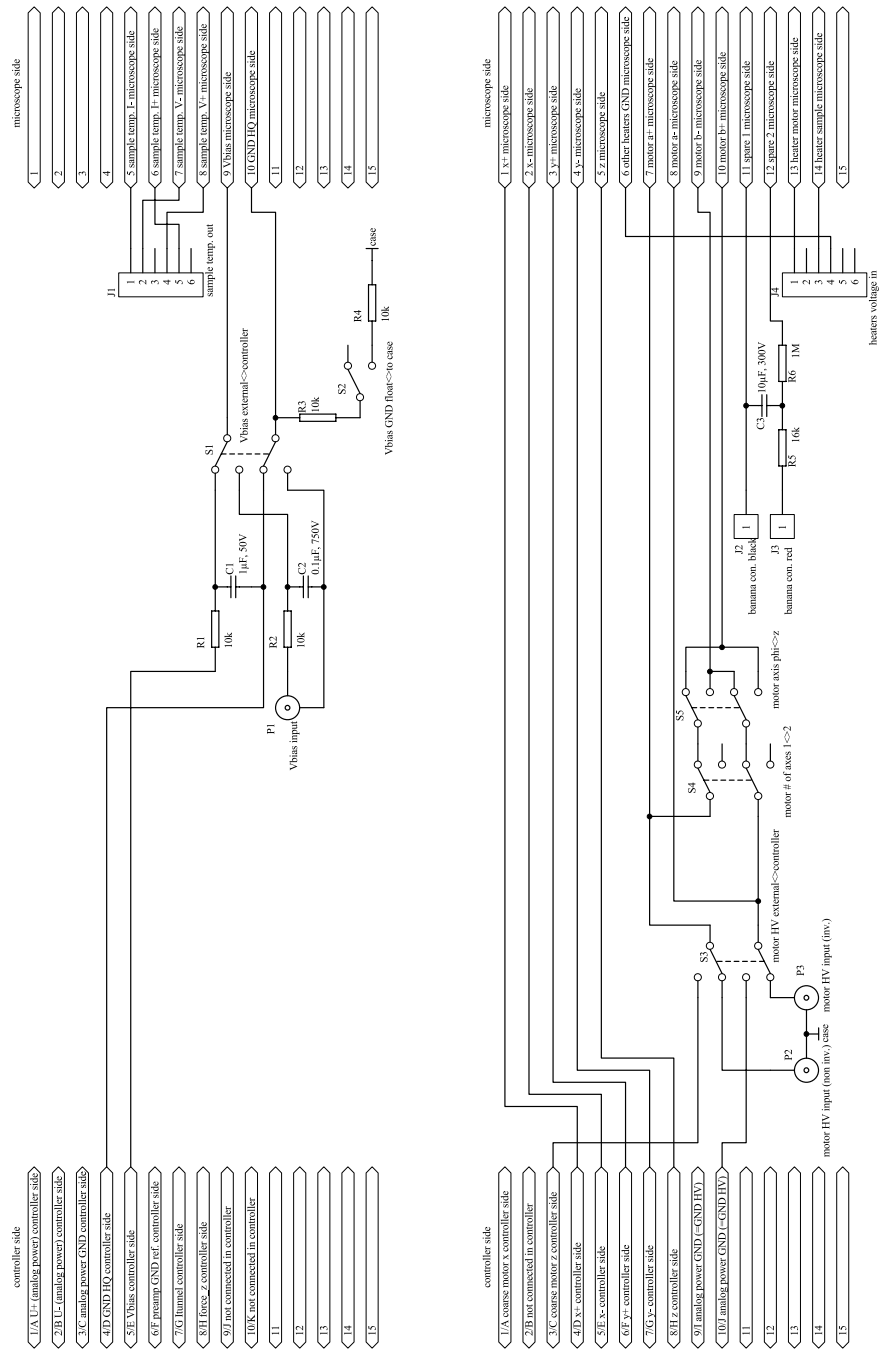


Abbildung B.8.: Schaltplan der passiven Schnittstelle. (Schaltplan erstellt in Anlehnung an [87].)



## C. Instrumentelle Entwicklungen

### Test eines Mikroskopkopfs

In Referenz [87] wurde ein Stecksockel vorgestellt, der den Austausch des Kraftsensors erleichtern sollte. Dieser Stecksockel (siehe Abbildung C.1) besteht aus einer Macor-Platte mit drei Steckstiften aus Platin-Iridium-Draht (90 % Pt, 10 % Ir). Auf

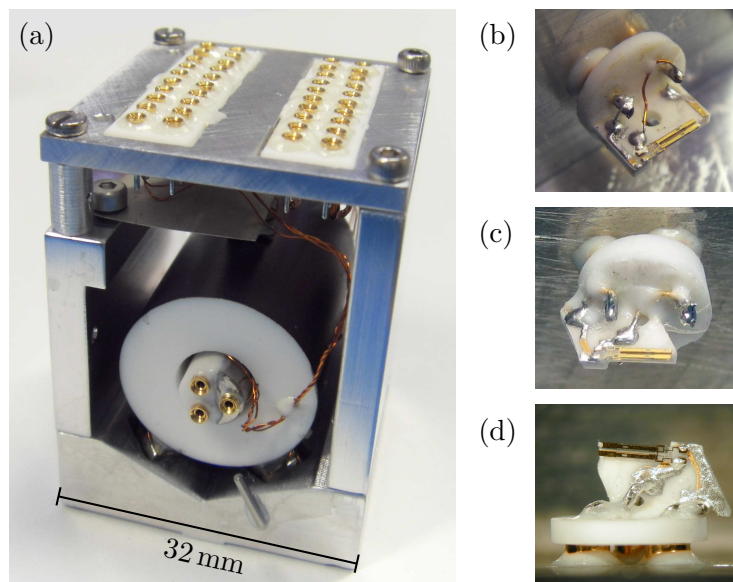


Abbildung C.1.: (a) Mikroskopkopf mit einer Steckfassung am Ende des Scanners, (b) bis (d) verschiedene Varianten des Stecksockels. Der Stecksockel wird in die Messingbuchsen der Steckfassung gesteckt.

die Macor-Platte wird das Aluminiumoxid-Substrat des qPlus-Sensors geklebt. Die Gold-Kontakte des Substrats werden mit kurzen Drähten mit den Steckstiften elektrisch verbunden. Am Ende des Scanners wird eine Steckfassung angebracht. Diese besteht im Wesentlichen aus drei vergoldeten Messingbuchsen mit Berylliumkupfer-Kontaktfedern, die die Steckstifte aufnehmen.

In der vorliegenden Arbeit wurde diese Modifikation des Mikroskopkopfs getestet. Beim ersten Einbau war die Güte des Sensors gut und es konnten an Luft Atome auf

---

Graphit aufgelöst werden. Damit sich die Spitze am nächsten an der Probe befand, war es nötig, den Stecksockel schief in die Fassung zu stecken. Dies führte jedoch dazu, dass sich der Stecksockel beim Ausheizen der Kammer bewegte und die Stimmgabel vor der Spitze in Kontakt mit der Probe trat. Dieses Problem konnte auch durch eine Drehung des Sensors nicht behoben werden. Eine Lösung des Problems war, die Macor-Platte des Stecksockels durch eine keilförmige Platte zu ersetzen (siehe Abbildung C.1(c)). Dieser Sensor besaß allerdings die Eigenschaft, dass seine Güte von 2000 bei Raumtemperatur auf eine Güte von 500 bei 4,7 K abfiel. Die Güte der bisherigen Sensoren lag bei 4,7 K in der Größenordnung von 10 000.

Eine weitere Alternative für einen Stecksockel ist in Abbildung C.1(d) zu sehen. Hier wurde das Aluminiumoxid-Substrat des qPlus-Sensors abgesägt, um zu gewährleisten, dass die Spitze am nächsten an der Probe ist. Außerdem wurden die Steckstifte so verbogen, dass sie in die Goldkontakte des Aluminiumoxid-Substrats ragten. Die elektrische Verbindung zwischen den Kontaktpads der Stimmgabel und den Steckstiften konnte so mit nur jeweils einer Kleberbrücke realisiert werden. Die Güte des qPlus-Sensors hing stark von der Position des Stecksockels in der Fassung ab. Aufgrund dieser Schwierigkeiten wurde auf eine weitere Verwendung des Stecksockels verzichtet und weiterhin ein mit dem Scanner fest verbundener Sensor verwendet.

## Vorversuche für einen neuen Probenträger

Mit dem zweigeteilten Probenträger für Gate-Messungen (siehe Kapitel 4.4) können die Proben nur bei Temperaturen bis zu 170 °C geheizt werden. Bei höheren Temperaturen wird der im Probenträger verwendete Kleber angesengt. Für eine Verbesserung der Probenoberfläche wäre eine höhere Temperatur während des Heizvorgangs nützlich. Dies setzt die Entwicklung eines neuen Probenträgers voraus, der ohne die Verwendung von Kleber auskommt. Eine Möglichkeit der Realisierung ist ein Klemmmechanismus (Abbildung C.2(a)). Der Probenträger besteht aus drei Teilen: zwei Flügeln und einem Mittelteil. Die beiden Flügel dienen als Kontakte für das Gate und die Grenzfläche. Um einen Kurzschluss zu vermeiden, besteht das Mittelteil aus einem elektrischen Isolator. Die beiden Flügel werden mit Hilfe eines Drahtes in das Mittelteil geklemmt.

Das Mittelteil besitzt an zwei gegenüberliegenden Flächen jeweils eine horizontale Einkerbung, die eine Höhe von 1,1 mm besitzt. Die beiden Flügel weisen Nasen der Dicke 1 mm auf, die in die Einkerbungen des Mittelteils ragen. In diese Nasen wurde eine halbrunde Vertiefung mit einer Tiefe von etwa 0,25 mm eingebracht. In diese Vertiefung wird ein Platin Draht mit einem Durchmesser von 0,5 mm gelegt. Flügel und Draht besitzen zusammen eine Dicke von 1,25 mm und sind somit dicker als die Einkerbung im Mittelteil hoch ist. Die Flügel können nun mit Hilfe des Drahts in die Einkerbung im Mittelteil geklemmt werden. Um eine Verdrehung der Flügel zu verhindern, besitzt die Einkerbung an ihrer Oberkante eine kleine Rille, die den Draht

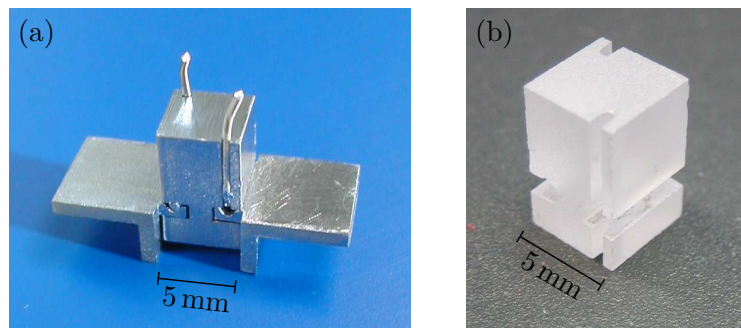


Abbildung C.2.: Konzept für einen neuen Probenhalter unter Verwendung eines Klemmmechanismus: (a) Prototyp aus Edelstahl, (b) Mittelteil aus Saphir.

führt. Die elektrischen Verbindungen müssen nun noch zur Probe geführt werden. Dazu werden die beiden Drähte, die für den Klemmmechanismus verwendet werden, genutzt. Sie werden in Spalten an den Seitenflächen des Mittelteils nach oben zur Probe geführt.

Ein erster Prototyp dieses Probenhalters wurde aus drei Edelstahlteilen gefertigt. Er war sehr stabil und konnte im Transfersystem transferiert werden. Der genutzte Klemmmechanismus liefert eine ausreichende Stabilität. Um den Probenhalter nutzen zu können, muss das Mittelteil aus einem elektrischen Isolator bestehen. Eine Möglichkeit wäre die Verwendung eines Saphir-Bauteils (Abbildung C.2(b)).



# Literaturverzeichnis

- [1] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber und E. Weibel, Surface studies by scanning tunneling microscopy, *Physical Review Letters* **49**, 57 (1982).
- [2] M. Knoll, Aufladepotential und Sekundäremission elektronenbestrahlter Körper, *Zeitschrift für technische Physik* **16**, 467 (1935).
- [3] G. Friedbacher und H. Fuchs, Classification of scanning probe microscopies, *Pure and Applied Chemistry* **71**, 1337 (1999).
- [4] G. Friedbacher und H. Fuchs, Klassifikation der rastersondenmikroskopischen Verfahren, *Angewandte Chemie* **115**, 5804–5820 (2003).
- [5] R. Young, J. Ward und F. Scire, The topografiner: An instrument for measuring surface microtopography, *Review of Scientific Instruments* **43**, 999 (1972).
- [6] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber und E. Weibel,  $7\times 7$  reconstruction on Si(111) resolved in real space, *Physical Review Letters* **50**, 120 (1983).
- [7] G. Binnig, C. F. Quate und C. Gerber, Atomic force microscope, *Physical Review Letters* **56**, 930 (1986).
- [8] D. A. Bonnell und J. Garra, Scanning probe microscopy of oxide surfaces: Atomic structure and properties, *Reports on Progress in Physics* **71**, 044501 (2008).
- [9] H. Koinuma, Chemistry and electronics of oxides from carbon dioxide to perovskite, *Thin Solid Films* **486**, 2 (2005).
- [10] J. Mannhart und D. G. Schlom, Oxide interfaces – an opportunity for electronics, *Science* **327**, 1607 (2010).
- [11] A. Tsukazaki, A. Ohtomo, T. Kita, Y. Ohno, H. Ohno und M. Kawasaki, Quantum Hall effect in polar oxide heterostructures, *Science* **315**, 1388 (2007).
- [12] A. Ohtomo und H. Y. Hwang, A high-mobility electron gas at the  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  heterointerface, *Nature* **427**, 423 (2004).
- [13] S. Thiel, G. Hammerl, A. Schmehl, C. W. Schneider und J. Mannhart, Tunable quasi-two-dimensional electron gases in oxide heterostructures, *Science* **313**, 1942 (2006).

- [14] M. Basletic, J. Maurice, C. Carrétéro, G. Herranz, O. Copie, M. Bibes, E. Jacquet, K. Bouzehouane, S. Fusil und A. Barthélémy, Mapping the spatial distribution of charge carriers in  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  heterostructures, *Nature Materials* **7**, 621 (2008).
- [15] C. Cen, S. Thiel, G. Hammerl, C. W. Schneider, K. E. Andersen, C. S. Hellberg, J. Mannhart und J. Levy, Nanoscale control of an interfacial metal-insulator transition at room temperature, *Nature Materials* **7**, 298 (2008).
- [16] C. Cen, S. Thiel, J. Mannhart und J. Levy, Oxide nanoelectronics on demand, *Science* **323**, 1026 (2009).
- [17] M. Breitschaft, V. Tinkl, N. Pavlenko, S. Paetel, C. Richter, J. R. Kirtley, Y. C. Liao, G. Hammerl, V. Eyert, T. Kopp und J. Mannhart, Two-dimensional electron liquid state at  $\text{LaAlO}_3\text{-SrTiO}_3$  interfaces, *Physical Review B* **81**, 153414 (2010).
- [18] A. Kalabukhov, Y. Boikov, I. Serenkov, V. Sakharov, V. Popok, R. Gunnarsson, J. Börjesson, N. Ljustina, E. Olsson, D. Winkler und T. Claeson, Cationic disorder and phase segregation in  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  heterointerfaces evidenced by medium-energy ion spectroscopy, *Physical Review Letters* **103** (2009).
- [19] V. N. Popok, A. Kalabukhov, R. Gunnarsson, S. Lemesko, T. Claeson und D. Winkler, Kelvin probe force microscopy study of  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  heterointerfaces, *Journal of Advanced Microscopy Research* **5**, 26 (2010).
- [20] D. A. Dikin, M. Mehta, C. W. Bark, C. M. Folkman, C. B. Eom und V. Chandrasekhar, Coexistence of superconductivity and ferromagnetism in two dimensions, *Physical Review Letters* **107**, 056802 (2011).
- [21] L. Li, C. Richter, J. Mannhart und R. C. Ashoori, Coexistence of magnetic order and two-dimensional superconductivity at  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  interfaces, *Nature Physics* **7**, 762 (2011).
- [22] J. A. Bert, B. Kalisky, C. Bell, M. Kim, Y. Hikita, H. Y. Hwang und K. A. Moler, Direct imaging of the coexistence of ferromagnetism and superconductivity at the  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  interface, *Nature Physics* **7**, 767 (2011).
- [23] N. Pavlenko, T. Kopp, E. Y. Tsymbal, G. A. Sawatzky und J. Mannhart, Magnetic and superconducting phases at the  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  interface: The role of interfacial Ti 3d electrons, *Physical Review B* **85**, 020407 (2012).
- [24] L. Li, C. Richter, S. Paetel, T. Kopp, J. Mannhart und R. C. Ashoori, Very large capacitance enhancement in a two-dimensional electron system, *Science* **332**, 825 (2011).
- [25] S. Kravchenko, V. Pudalov und S. Semenchinsky, Negative density of states of 2D electrons in a strong magnetic field, *Physics Letters A* **141**, 71 (1989).

- [26] J. P. Eisenstein, L. N. Pfeiffer und K. W. West, Negative compressibility of interacting two-dimensional electron and quasiparticle gases, *Physical Review Letters* **68**, 674 (1992).
- [27] G. Allison, E. A. Galaktionov, A. K. Savchenko, S. S. Safonov, M. M. Fogler, M. Y. Simmons und D. A. Ritchie, Thermodynamic density of states of two-dimensional GaAs systems near the apparent metal-insulator transition, *Physical Review Letters* **96**, 216407 (2006).
- [28] S. Ilani, L. A. K. Donev, M. Kindermann und P. L. McEuen, Measurement of the quantum capacitance of interacting electrons in carbon nanotubes, *Nature Physics* **2**, 687 (2006).
- [29] J. P. Eisenstein, L. N. Pfeiffer und K. W. West, Compressibility of the two-dimensional electron gas: Measurements of the zero-field exchange energy and fractional quantum Hall gap, *Physical Review B* **50**, 1760 (1994).
- [30] V. Tinkl, M. Breitschaft, C. Richter und J. Mannhart, Large negative electronic compressibility of LaAlO<sub>3</sub>-SrTiO<sub>3</sub> interfaces with ultrathin LaAlO<sub>3</sub> layers, *Physical Review B* **86**, 075116 (2012).
- [31] P. M. Solomon, Device proposals beyond silicon CMOS, in Future trends in microelectronics: From nanophotonics to sensors to energy, Wiley-IEEE Press (2010).
- [32] G. Binnig und H. Rohrer, Scanning tunneling microscopy – from birth to adolescence, *Reviews of Modern Physics* **59**, 615 (1987).
- [33] F. J. Giessibl, S. Hembacher, H. Bielefeldt und J. Mannhart, Subatomic features on the silicon (111)-(7×7) surface observed by atomic force microscopy, *Science* **289**, 422 (2000).
- [34] S. Hembacher, F. J. Giessibl und J. Mannhart, Force microscopy with light-atom probes, *Science* **305**, 380 (2004).
- [35] D. W. Pohl, Dynamic piezoelectric translation devices, *Review of Scientific Instruments* **58**, 54 (1987).
- [36] A. R. Smith, S. Gwo und C. K. Shih, A new high-resolution two-dimensional micropositioning device for scanning probe microscopy applications, *Review of Scientific Instruments* **65**, 3216 (1994).
- [37] C. Renner, P. Niedermann, A. D. Kent und Ø. Fischer, A vertical piezoelectric inertial slider, *Review of Scientific Instruments* **61**, 965 (1990).
- [38] G. Binnig und D. P. E. Smith, Single-tube three-dimensional scanner for scanning tunneling microscopy, *Review of Scientific Instruments* **57**, 1688 (1986).
- [39] C. J. Chen, Introduction to scanning tunneling microscopy, Oxford University Press, 2. Auflage (2008).

- [40] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber und E. Weibel, Tunneling through a controllable vacuum gap, *Applied Physics Letters* **40**, 178 (1982).
- [41] J. Bardeen, Tunnelling from a many-particle point of view, *Physical Review Letters* **6**, 57 (1961).
- [42] R. Feenstra, J. A. Stroscio und A. Fein, Tunneling spectroscopy of the Si(111)2×1 surface, *Surface Science* **181**, 295 (1987).
- [43] J. A. Stroscio und W. J. Kaiser, Scanning tunneling microscopy, Band 27 von *Methods of experimental physics*, Academic Press (1993).
- [44] F. J. Giessibl, Atomic resolution of the silicon (111)-(7×7) surface by atomic force microscopy, *Science* **267**, 68 (1995).
- [45] C. Kittel, Einführung in die Festkörperphysik, Oldenbourg, München, 14. Auflage (2006).
- [46] F. J. Giessibl, Forces and frequency shifts in atomic-resolution dynamic-force microscopy, *Physical Review B* **56**, 16010 (1997).
- [47] H. Hamaker, The London – van der Waals attraction between spherical particles, *Physica* **4**, 1058 (1937).
- [48] J. N. Israelachvili, Intermolecular and surface forces, Academic Press, London, 2. Auflage (1991).
- [49] F. J. Giessibl, Advances in atomic force microscopy, *Reviews of Modern Physics* **75**, 949 (2003).
- [50] Y. Martin, C. C. Williams und H. K. Wickramasinghe, Atomic force microscope–force mapping and profiling on a sub 100-Å scale, *Journal of Applied Physics* **61**, 4723 (1987).
- [51] T. R. Albrecht, S. Akamine, T. E. Carver und C. F. Quate, Microfabrication of cantilever styli for the atomic force microscope, *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films* **8**, 3386 (1990).
- [52] T. R. Albrecht, P. Grütter, D. Horne und D. Rugar, Frequency modulation detection using high-*Q* cantilevers for enhanced force microscope sensitivity, *Journal of Applied Physics* **69**, 668 (1991).
- [53] F. J. Giessibl, A direct method to calculate tip–sample forces from frequency shifts in frequency-modulation atomic force microscopy, *Applied Physics Letters* **78**, 123 (2001).
- [54] M. Nonnenmacher, M. P. O’Boyle und H. K. Wickramasinghe, Kelvin probe force microscopy, *Applied Physics Letters* **58**, 2921 (1991).
- [55] N. W. Ashcroft und D. N. Mermin, Festkörperphysik, Oldenbourg, 3. Auflage (2007).

- 
- [56] W. A. Zisman, A new method of measuring contact potential differences in metals, *Review of Scientific Instruments* **3**, 367 (1932).
- [57] Y. Martin, D. W. Abraham und H. K. Wickramasinghe, High-resolution capacitance measurement and potentiometry by force microscopy, *Applied Physics Letters* **52**, 1103 (1988).
- [58] D. W. Abraham, C. Williams, J. Slinkman und H. K. Wickramasinghe, Lateral dopant profiling in semiconductors by force microscopy using capacitive detection, *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures* **9**, 703 (1991).
- [59] D. Sarid, Scanning force microscopy: With applications to electric, magnetic, and atomic forces, Oxford University Press (1994).
- [60] A. Sasahara, C. L. Pang und H. Onishi, Probe microscope observation of platinum atoms deposited on the  $\text{TiO}_2(110)-(1\times 1)$  surface, *Journal of Physical Chemistry B* **110**, 13453 (2006).
- [61] A. Kikukawa, S. Hosaka und R. Imura, Vacuum compatible high-sensitive Kelvin probe force microscopy, *Review of Scientific Instruments* **67**, 1463 (1996).
- [62] T. Glatzel, S. Sadewasser und M. Lux-Steiner, Amplitude or frequency modulation-detection in Kelvin probe force microscopy, *Applied Surface Science* **210**, 84 (2003).
- [63] S. A. Burke, J. M. LeDue, Y. Miyahara, J. M. Topple, S. Fostner und P. Grütter, Determination of the local contact potential difference of PTCDA on NaCl: A comparison of techniques, *Nanotechnology* **20**, 264012 (2009).
- [64] S. Hayward, F. Morrison, S. Redfern, E. Salje, J. Scott, K. Knight, S. Tarantino, A. Glazer, V. Shuvaeva, P. Daniel, M. Zhang und M. Carpenter, Transformation processes in  $\text{LaAlO}_3$ : Neutron diffraction, dielectric, thermal, optical, and Raman studies, *Physical Review B* **72**, 054110 (2005).
- [65] S. Lim, S. Kriventsov, T. N. Jackson, J. H. Haeni, D. G. Schlom, A. M. Balbashev, R. Uecker, P. Reiche, J. L. Freeouf und G. Lucovsky, Dielectric functions and optical bandgaps of high- $K$  dielectrics for metal-oxide-semiconductor field-effect transistors by far ultraviolet spectroscopic ellipsometry, *Journal of Applied Physics* **91**, 4500 (2002).
- [66] Y. A. Abramov, V. G. Tsirelson, V. E. Zavodnik, S. A. Ivanov und I. D. Brown, The chemical bond and atomic displacements in  $\text{SrTiO}_3$  from X-ray diffraction analysis, *Acta Crystallographica Section B Structural Science* **51**, 942 (1995).
- [67] K. A. Müller, W. Berlinger und F. Waldner, Characteristic structural phase transition in perovskite-type compounds, *Physical Review Letters* **21**, 814 (1968).
- [68] G. Schmidt und E. Hegenbarth, Elektromechanische Eigenschaften von Strontiumtitanateinkristallen, *Physica Status Solidi (b)* **3**, 329 (1963).

- [69] K. van Benthem, C. Elsässer und R. H. French, Bulk electronic structure of  $\text{SrTiO}_3$ : Experiment and theory, *Journal of Applied Physics* **90**, 6156 (2001).
- [70] H. P. R. Frederikse, W. R. Thurber und W. R. Hosler, Electronic transport in strontium titanate, *Physical Review* **134**, A442 (1964).
- [71] W. Luo, W. Duan, S. Louie und M. Cohen, Structural and electronic properties of  $n$ -doped and  $p$ -doped  $\text{SrTiO}_3$ , *Physical Review B* **70**, 214109 (2004).
- [72] K. A. Müller und H. Burkard,  $\text{SrTiO}_3$ : An intrinsic quantum paraelectric below 4 K, *Physical Review B* **19**, 3593 (1979).
- [73] J. H. Barrett, Dielectric constant in perovskite type crystals, *Physical Review* **86**, 118 (1952).
- [74] E. Sawaguchi, A. Kikuchi und Y. Kodera, Dielectric constant of strontium titanate at low temperatures, *Journal of the Physical Society of Japan* **17**, 1666 (1962).
- [75] H. Christen, J. Mannhart, E. J. Williams und C. Gerber, Dielectric properties of sputtered  $\text{SrTiO}_3$  films, *Physical Review B* **49**, 12095 (1994).
- [76] M. Kawasaki, K. Takahashi, T. Maeda, R. Tsuchiya, M. Shinohara, O. Ishiyama, T. Yonezawa, M. Yoshimoto und H. Koinuma, Atomic control of the  $\text{SrTiO}_3$  crystal surface, *Science* **266**, 1540 (1994).
- [77] G. Koster, B. L. Kropman, G. J. H. M. Rijnders, D. H. A. Blank und H. Rogalla, Quasi-ideal strontium titanate crystal surfaces through formation of strontium hydroxide, *Applied Physics Letters* **73**, 2920 (1998).
- [78] N. Nakagawa, H. Y. Hwang und D. A. Muller, Why some interfaces cannot be sharp, *Nature Materials* **5**, 204 (2006).
- [79] R. Pentcheva und W. Pickett, Avoiding the polarization catastrophe in  $\text{LaAlO}_3$  overlayers on  $\text{SrTiO}_3(001)$  through polar distortion, *Physical Review Letters* **102**, 107602 (2009).
- [80] A. Brinkman, M. Huijben, M. van Zalk, J. Huijben, U. Zeitler, J. C. Maan, W. G. van der Wiel, G. Rijnders, D. H. A. Blank und H. Hilgenkamp, Magnetic effects at the interface between non-magnetic oxides, *Nature Materials* **6**, 493 (2007).
- [81] W. Siemons, G. Koster, H. Yamamoto, T. H. Geballe, D. H. A. Blank und M. R. Beasley, Experimental investigation of electronic properties of buried heterointerfaces of  $\text{LaAlO}_3$  on  $\text{SrTiO}_3$ , *Physical Review B* **76**, 155111 (2007).
- [82] Y. Liao, T. Kopp, C. Richter, A. Rosch und J. Mannhart, Metal-insulator transition of the  $\text{LaAlO}_3$ - $\text{SrTiO}_3$  interface electron system, *Physical Review B* **83**, 075402 (2011).

- 
- [83] B. Förg, C. Richter und J. Mannhart, Field-effect devices utilizing LaAlO<sub>3</sub>-SrTiO<sub>3</sub> interfaces, *Applied Physics Letters* **100**, 053506 (2012).
- [84] R. Arras, V. G. Ruiz, W. E. Pickett und R. Pentcheva, Tuning the two-dimensional electron gas at the LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub>(001) interface by metallic contacts, *Physical Review B* **85**, 125404 (2012).
- [85] S. C. Dultz und H. W. Jiang, Thermodynamic signature of a two-dimensional metal-insulator transition, *Physical Review Letters* **84**, 4689 (2000).
- [86] S. Hembacher, Simultane Rasterkraft- und Rastertunnelmikroskopie bei 5 K im Ultrahochvakuum, Dissertation, Universität Augsburg (2004).
- [87] M. Breitschaft, Elektronische Charakterisierung von LaAlO<sub>3</sub>-SrTiO<sub>3</sub>-Grenzflächen mittels Rastertunnelspektroskopie, Dissertation, Universität Augsburg (2010).
- [88] PI Ceramic GmbH, Lindenstrasse, 07589 Lederhose.
- [89] EBL Products Inc., 22 Prestige Park Circle, East Hartford, CT 06108, USA.
- [90] F. J. Giessibl, High-speed force sensor for force microscopy and profilometry utilizing a quartz tuning fork, *Applied Physics Letters* **73**, 3956 (1998).
- [91] F. J. Giessibl, Atomic resolution on Si(111)-(7×7) by noncontact atomic force microscopy with a force sensor based on a quartz tuning fork, *Applied Physics Letters* **76**, 1470 (2000).
- [92] Micro Crystal AG, Mühlestrasse 14, CH-2540 Grenchen, Schweiz.
- [93] Henkel AG & Co. KGaA, Henkelstraße 67, 40191 Düsseldorf.
- [94] Epoxy Technology Inc., 14 Fortune Drive, Billerica, MA 01821, USA.
- [95] J. F. Nye, Physical properties of crystals: Their representation by tensors and matrices, Clarendon Press, Oxford (1992).
- [96] D. F. Nelson (Herausgeber), Group III: Solid state physics. Vol. 29: Low frequency properties of dielectric crystals. Subvol. b: Piezoelectric, pyroelectric and related constants, Band 3,29,2 von *Landolt-Börnstein Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik / Neue Serie*, Springer (1993).
- [97] W. G. Cady, Piezoelectricity, McGraw-Hill, New York (1946).
- [98] P. H. Carr, Measurement of the piezoelectric constant of quartz at gigacycle frequencies, *The Journal of the Acoustical Society of America* **41**, 75 (1967).
- [99] Bruker AXS Inc., 5465 East Cheryl Parkway, Madison, WI 53711-5373, USA.
- [100] Keithley Instruments Inc., 28775 Aurora Road, Cleveland, Ohio 44139, USA.
- [101] Stanford Research Systems Inc., 1290-D Reamwood Avenue, Sunnyvale, CA 94089, USA.

- [102] Nanosurf AG, Gräubernstrasse 12-14, 4410 Liestal, Schweiz.
- [103] Detakta Isolier- und Messtechnik GmbH & Co. KG, Hans-Böckler-Ring 19, 22851 Norderstedt.
- [104] CrysTec GmbH, Köpenicker Str. 325, 12555 Berlin.
- [105] S. P. Thiel, Study of interface properties in  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  heterostructures, Dissertation, Universität Augsburg (2009).
- [106] Coherent Inc., 5100 Patrick Henry Drive, Santa Clara, CA 95054, USA.
- [107] V. Tinkl, Tunnelspektroskopie an  $\text{LaAlO}_3$ - $\text{SrTiO}_3$ -Heterostrukturen (2009), Diplomarbeit, Universität Augsburg (2009).
- [108] AIR LIQUIDE Deutschland GmbH, Hans-Günther-Sohl-Straße 5, 40235 Düsseldorf.
- [109] L. J. van der Pauw, A method of measuring specific resistivity and Hall effect of discs of arbitrary shape, *Philips Research Reports* **13**, 1 (1958).
- [110] Fei Worldwide Corporate Headquarters, 5350 NE Dawson Creek Drive, Hillsboro, Oregon 97124, USA.
- [111] A. D. Caviglia, S. Gariglio, N. Reyren, D. Jaccard, T. Schneider, M. Gabay, S. Thiel, G. Hammerl, J. Mannhart und J. Triscone, Electric field control of the  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  interface ground state, *Nature* **456**, 624 (2008).
- [112] R. G. Wilson, Vacuum thermionic work functions of polycrystalline Nb, Mo, Ta, W, Re, Os, and Ir, *Journal of Applied Physics* **37**, 3170 (1966).
- [113] R. C. Neville, B. Hoeneisen und C. A. Mead, Permittivity of strontium titanate, *Journal of Applied Physics* **43**, 2124 (1972).
- [114] J. T. Haraldsen, P. Wölfle und A. V. Balatsky, Understanding the electric-field enhancement of the superconducting transition temperature for complex oxide interfaces, *Physical Review B* **85**, 134501 (2012).
- [115] J. D. Meindl, Q. Chen und J. A. Davis, Limits on silicon nanoelectronics for terascale integration, *Science* **293**, 2044 (2001).
- [116] Y. Taur, CMOS design near the limit of scaling, *IBM Journal of Research and Development* **46**, 213 (2002).
- [117] G. D. Wilk, R. M. Wallace und J. M. Anthony, High- $\kappa$  gate dielectrics: Current status and materials properties considerations, *Journal of Applied Physics* **89**, 5243 (2001).
- [118] J. Robertson, High dielectric constant gate oxides for metal oxide Si transistors, *Reports on Progress in Physics* **69**, 327 (2006).



- [119] T. Kopp und J. Mannhart, Calculation of the capacitances of conductors: Perspectives for the optimization of electronic devices, *Journal of Applied Physics* **106**, 064504 (2009).
- [120] S. Wemple, M. Didomenico Jr. und I. Camlibel, Dielectric and optical properties of melt-grown BaTiO<sub>3</sub>, *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **29**, 1797 (1968).
- [121] C. M. Rey, H. Mathias, L. R. Testardi und S. Skirius, High dielectric constant and nonlinear electric response in nonmetallic YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6+δ</sub>, *Physical Review B* **45**, 10639 (1992).
- [122] O. Forster, Analysis 3: Integralrechnung im  $\mathbb{R}^n$  mit Anwendungen, Vieweg, 3. Auflage (1999).

# Danksagung

Meinem Doktorvater Prof. Dr. J. Mannhart danke ich, dass er mir die Möglichkeit geboten hat, die Forschung an diesem interessanten Thema durchzuführen. Außerdem danke ich ihm für die fortwährend engagierte Betreuung und Unterstützung.

P.D. Dr. H.-A. Krug von Nidda danke ich für die Übernahme der Zweitkorrektur dieser Arbeit.

Prof. Dr. T. Kopp danke ich für seinen Rat bei theoretischen Fragestellungen und sein stets offenes Ohr.

Prof. Dr. G. Hammerl danke ich für den Rat bezüglich typografischer Fragestellungen und für die Aufrechterhaltung der guten Arbeitsbedingungen am Lehrstuhl.

Dr. M. Breitschaft danke ich für die Einarbeitung in den Versuchsaufbau, für seine Unterstützung bei den Messungen und für seinen Enthusiasmus. Außerdem danke ich ihm dafür, dass er trotz seines Wechsels in die Industrie stets am Fortgang meiner Arbeit interessiert war und mir mit Rat zur Seite stand.

Dipl. Phys. C. Richter danke ich für die Herstellung der untersuchten Proben und für die bereitwillige Beantwortung all meiner Fragen zur  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostruktur. Außerdem danke ich Dipl. Phys. C. Richter und Dipl. Phys. R. Jany für die tatkräftige Hilfe bei den Transportmessungen.

Dipl. Phys. K. Steffen danke ich für die Hilfe bei theoretischen Fragestellungen zur negativen Kompressibilität.

Dipl. Ing. (FH) K. Wiedenmann und Dipl. Ing. (FH) A. Herrnberger danke ich für die Unterstützung bei allen instrumentellen Fragen.

E. Saladie und B. Eisenschmid danke ich für die Hilfe bei allen verwaltungstechnischen Angelegenheiten.

Meinen jetzigen und ehemaligen Bürokollegen Dipl. Phys. T. Mairoser, Dipl. Phys. S. Meir, Dipl. Phys. R. Berktold, M. Sc. C. Woltmann danke ich für die stets angenehme Stimmung im Büro und für ausgiebige Diskussionen.

Den Mitarbeitern der feinmechanischen Werkstatt danke ich für die Fertigung der Bauteile für das Mikroskop.

Den nicht namentlich erwähnten Mitarbeitern des Lehrstuhls danke ich für die fort-dauernd angenehme Atmosphäre am Lehrstuhl und die stets offenen Türen.

# Lebenslauf

## Persönliche Daten:

Name: Veronika Vera Tinkl  
Geburtsdatum: 01.01.1985 in Landsberg am Lech

## Ausbildung:

09/1991 – 07/1995      Grundschule in Kaufering  
09/1995 – 07/2004      Dominikus-Zimmermann-Gymnasium in Landsberg am  
Lech mit Abschluss Abitur  
10/2004 – 10/2009      Studium der Physik an der Universität Augsburg,  
Abschluss mit Diplom in Physik  
seit 11/2009            Wissenschaftliche Mitarbeiterin am Lehrstuhl für  
Experimentalphysik VI an der Universität Augsburg